





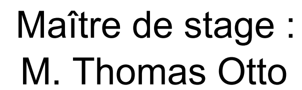
Master 2 de Radioprotection
2004 - 2005

Caractérisation radiologique de cibles expérimentales irradiées en vue de leur évacuation






Aurélie Epely
Avril – Septembre 2005


Maître de stage :
M. Thomas Otto

Remerciements

En premier lieu, mes remerciements s'adressent à l'Organisation Européenne pour la Recherche Nucléaire qui a accepté de m'accueillir afin d'effectuer mon stage de fin d'études.

Je remercie également d'avance Messieurs Jacques Balosso et Patrick Fracas qui, en tant que rapporteurs, auront l'amabilité de consacrer une partie de leur temps à la lecture de ce travail.

Merci à mon maître de stage Monsieur Thomas Otto de m'avoir confié ce travail des plus captivant. L'autonomie et, en même temps, le suivi dont j'ai bénéficié m'ont permis de mener cette étude sous un angle très intéressant. J'ai ainsi pu découvrir le monde de la recherche et approfondir mes connaissances sur de nombreux points, ce qui m'a apporté beaucoup de satisfaction.

Je remercie aussi le personnel de spectrométrie pour leur aide et leurs explications.

Je n'oublie pas, bien sûr, l'équipe du service de dosimétrie pour leur amabilité et surtout leur bonne humeur quotidienne.

Sommaire

Introduction



Le monde de la recherche fondamentale est un monde formé de divers domaines recouvrant l'ensemble des sciences. Parmi ces différents domaines, il existe celui de la recherche nucléaire qui permet d'explorer ce dont la matière est faite, quelles forces assurent sa cohésion et quels genres d'interactions peuvent s'y dérouler. Ces recherches fondamentales permettent une meilleure connaissance et surtout une meilleure maîtrise des diverses applications des rayonnements ionisants.

De nombreuses expériences sont donc crées puis mises en place dans des installations expérimentales. Outre l'apport de précieuses données scientifiques, celles-ci mènent à la création de déchets expérimentaux. La nature de ces déchets, du fait de leur caractère radioactif, nécessite un traitement à part. Ainsi, parallèlement à celui de la recherche, tout un domaine concernant la gestion des déchets existe d'une manière indissociable. Celui-ci est d'ailleurs un sujet d'actualité du fait de son impact sur l'avenir de l'environnement. En effet, certains déchets expérimentaux, présentant des périodes de décroissance très longues, poseront encore problème dans une centaine d'années.

La solution envisagée pour ce type de déchets est, pour beaucoup de pays - et notamment la Suisse - le stockage définitif en profondeur. Celui-ci demande donc la mise en place de méthodes d'évacuation de déchets précises et sûres.

Le sujet que nous allons aborder concerne l'aide à la mise en place d'une procédure d'élimination de cibles irradiées en provenance d'une installation expérimentale du CERN. Cette procédure s'appuiera sur l'utilisation d'un code de calcul permettant de caractériser radiologiquement les structures de ces déchets. L'objet précis de cette étude sera de définir le contenu isotopique de différents échantillons prélevés sur ces cibles de deux manières différentes. On mènera donc en parallèle une recherche par analyse spectrométrique et une recherche par simulation numérique afin de comparer les résultats obtenus et ainsi valider ce code de calcul. Cet exposé est orienté, par choix, vers le domaine spectrométrique.

Nous aborderons le sujet par une présentation du CERN et de l'installation expérimentale ISOLDE. Ensuite, nous nous pencherons sur la problématique du sujet puis sur la méthodologie appliquée pour la validation de cette technique. Suivront une explication détaillée de la méthode spectrométrique et une présentation des résultats obtenus. Nous verrons, pour finir, les différentes méthodes de validations parallèlement effectuées ainsi qu'un exemple de procédure d'élimination qui pourra être mis en place.

Présentation

1. Le CERN

Le CERN est l'organisation européenne pour la recherche nucléaire. C'est aussi le plus grand centre de physique des particules au monde. Sa fonction est de rechercher les constituants fondamentaux de la matière et leurs interactions.

L'acronyme CERN signifie littéralement "Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire", mais ce conseil, crée à titre provisoire en 1952 lors de la création du projet, a été dissout en 1954 pour laisser place a l'Organisation Européenne pour la Physique des Particules. Cependant, l'acronyme CERN, devenu familier, a été conservé.

Sa création remonte à la fin de la seconde guerre mondiale, quand Louis de Broglie a eu l'idée de créer un laboratoire scientifique international afin de redonner du prestige à la science européenne.
C'est ainsi que le 29 septembre 1954, après diverses négociations, est né le CERN, issu de la collaboration de 12 pays européens avec parmi eux, la France et la Suisse.
Le but de cette organisation est la recherche au sens pur du terme, c'est-à-dire sans aucun but militaire. Ainsi, tout résultat d'expérience devra être publié et partagé.

Un an après sa création, la construction proprement dite débute sur le site actuel, c'est à dire à côté de Genève, sur la frontière Franco-Suisse.
Le premier accélérateur SC (Syncho-Cyclotron à proton de 600 MeV) entre en service dès 1957. C'est en 1959, avec l'ouverture du Synchrotron à Proton (PS) de 28 GeV (énergie la plus élevée du monde), que le CERN se place en leader mondial. Suivront la construction de l'installation ISOLDE (étude des noyaux à durée de vie très courte) en 1967 et la mise en service du SPS (Super Synchrotron à Proton de 500 GeV) en 1976.
En 1989, le CERN inaugure le plus grand instrument scientifique jamais construit : le LEP (Grand Collisionneur Electrons Positons). Cet anneau, de 27 Km de circonférence et placé à 100m de profondeur, donnera lieu à de multiples découvertes.

Parallèlement, Tim Berners-Lee crée un moyen d'établir des liens entre des documents stockés dans différents ordinateurs. Ainsi naît le "World Wide Web", c'est à dire internet.

Le dernier grand projet en date du CERN concerne la construction du LHC (Grand Collisionneur de Hadrons). Celui-ci prendra place dans le tunnel du LEP (arrêté depuis 2000). Il permettra de reconstituer les conditions présentes quelques secondes après le Big Bang et cherchera à mettre en évidence l'existence du boson de Higgs. Sa mise en service est prévue pour 2007.



Figure 1: Vue aérienne du site d'implantation du CERN avec la position de différents accélérateurs et installations expérimentales

Aujourd'hui, le CERN comprend 20 états membres (France, Royaume Uni, Danemark, Belgique, Pays-Bas, Italie, Suisse, Allemagne, Grèce, Suède, Norvège, Autriche, Espagne, Portugal, Pologne, Finlande, Hongrie, Républiques Tchèque et Slovaque et la Bulgarie).
Il est composé de deux sites : Le site de Prévessin situé sur le territoire français et celui de Meyrin situé a cheval sur les territoires français et suisse.
Environ 2500 personnes y sont employées, hommes et femmes, couvrant un large éventail de compétences et de métiers (physiciens, ingénieurs, techniciens, ouvriers qualifiés, administrateurs, secrétaires). Le personnel scientifique et technique conçoit et construit l'appareillage sophistiqué du laboratoire et assure son bon fonctionnement. Il contribue également à la préparation et à la mise en oeuvre des expériences scientifiques complexes ainsi qu'à l'analyse et à l'interprétation des résultats. Environ 6500 scientifiques, soit la moitié des physiciens et physiciennes des particules dans le monde, viennent utiliser les installations du CERN. Ils représentent 500 universités et plus de 80 nationalités.

2. Sécurité et radioprotection

En raison à la fois de son statut international et du caractère unique en Europe de certaines de ses activités, le CERN possède une réglementation qui lui est propre en matière de sécurité. Elle est fondée sur celles des Etats-hôtes (France et Suisse) et de préférence les plus avancées. Dans tous les cas, le CERN est tenu de respecter les règles en vigueur sur les territoires Français et Helvétique et de veiller au maintient d'un degré de sécurité au moins égal à celui qu'offre leur réglementation propre. Les responsabilités et devoirs en matière de sécurité se trouvent à tous les niveaux de la hiérarchie du CERN.
La complexité de l'application de la radioprotection au CERN repose sur le fait que la France et la Suisse possèdent des législations différentes, notamment dans le domaine de la gestion des déchets radioactifs.
Les accords du CERN avec les Pays-Hôtes sont tels que les déchets produits sur le site de Meyrin seront totalement stockés en Suisse (bien que le site se trouve sur la frontière Franco-suisse) et traités selon ses prescriptions.
Ceci sera donc le cas pour les déchets issus de l'installation expérimentale ISOLDE, située sur le site de Meyrin.

3. Présentation d’ISOLDE

3.1. Principe de l’installation

L’installation ISOLDE (ISotope mass Separator On Line) a été créée en 1967.
Sa fonction est de produire des ions radioactifs, à des fins expérimentales, par irradiation d’une cible par des protons.
Un faisceau de protons issu du PS Booster (Pré accélérateur de protons pour le PS) est dirigé sur une cible. Les protons de 1.4 GeV vont interagir avec le volume cible et créer différents types de radioéléments. Ceux-ci vont être extraits, ionisés, accélérés et enfin triés par un séparateur de masse magnétique. Ils seront, par la suite, dirigés vers différentes lignes expérimentales.
On distingue deux parties sur la ligne de production: une partie amovible (en amont) et une partie fixe.
La partie amovible est constituée par la cible dans son ensemble qui comporte, communément, le volume cible, la géométrie d’extraction et l’ionisateur.
La partie fixe, quand à elle, est composée des sections accélératrices, du séparateur de masse et enfin des différentes lignes expérimentales.

Il existe dans le cas de l’installation ISOLDE deux lignes de production de ce type dont la seule différence réside dans le modèle du spectromètre de masse. Mais ceci a peu d’influence sur notre étude étant donné que nous nous intéresserons, qu’à la partie amovible (ou amont), c'est-à-dire la cible. De plus tous les types de cible sont adaptables et interchangeables aux deux lignes de production.

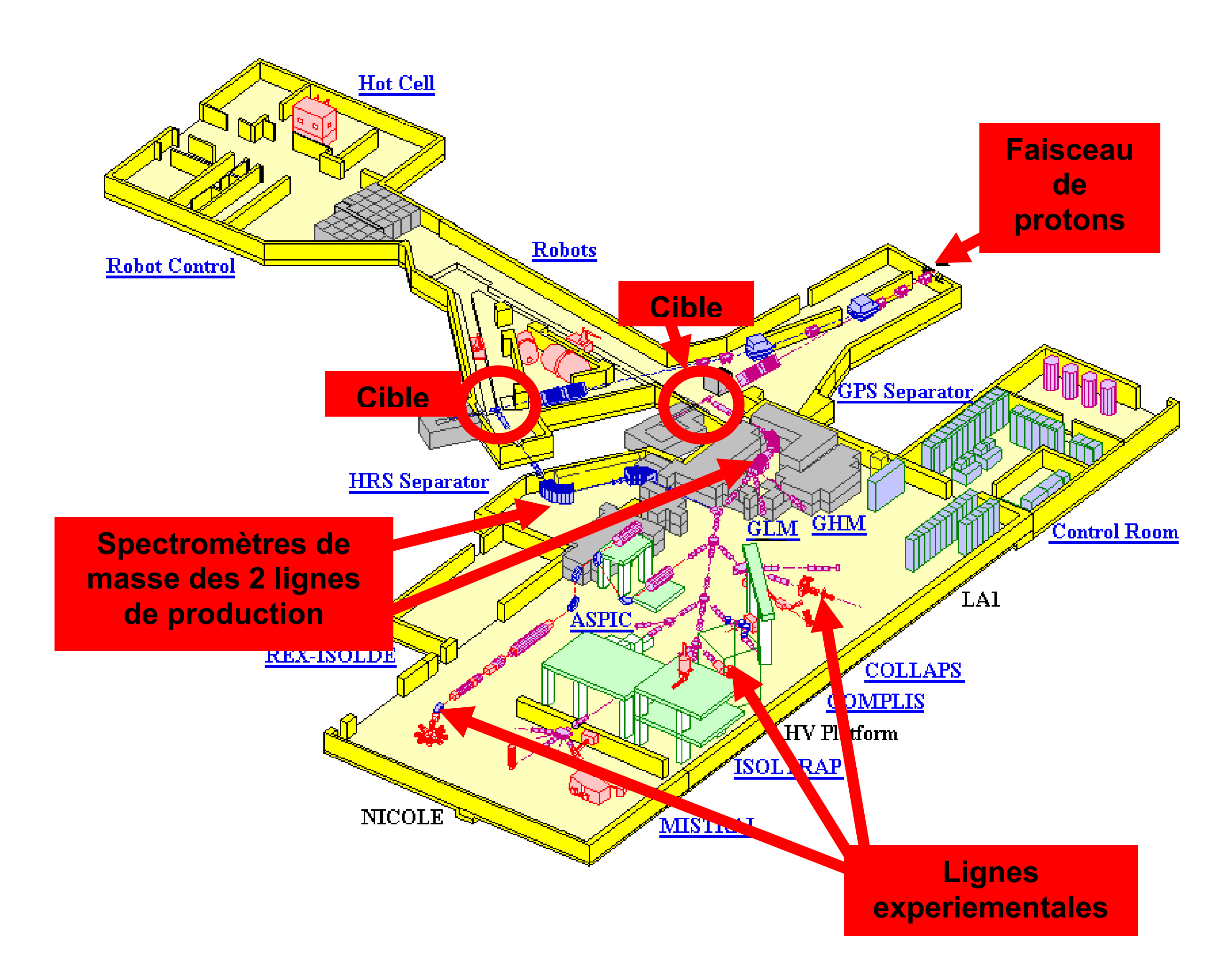


Figure 2: Plan de l'installation expérimentale ISOLDE

L'installation ISOLDE est capable, à l'heure actuelle, de créer pratiquement tous les spécimens d'ions.
Le choix de produire tel ou tel type d'ion est régit par les besoins expérimentaux des diverses études menées au bout de chaque ligne de production. Un planning, tenant compte des besoins et de la durée de chaque expérience, permet de prévoir la fabrication d'un certain type de cible afin de créer une espèce d'ion bien définie.
A chaque type d'ion que l'on veut produire correspond une architecture et une composition de cible bien spécifique.

3.2. Description des cibles ISOLDE

Les cibles utilisées par l'installation ISOLDE, pour la production d'ions radioactifs, se présentent, d'une manière générale, comme un cylindre creux en aluminium (ou « casserole ») d'environ trente centimètres de diamètre accolé à une structure métallique plus complexe. Cette dernière partie est celle que l'on va accrocher au « front end » c'est-à-dire au début de la partie fixe de la ligne de production. Tout l'intérieur de la cible est maintenu sous vide. Cette architecture extérieure est commune à toutes les sortes de cibles.



Figure 3 : Photo d'une cible ISOLDE

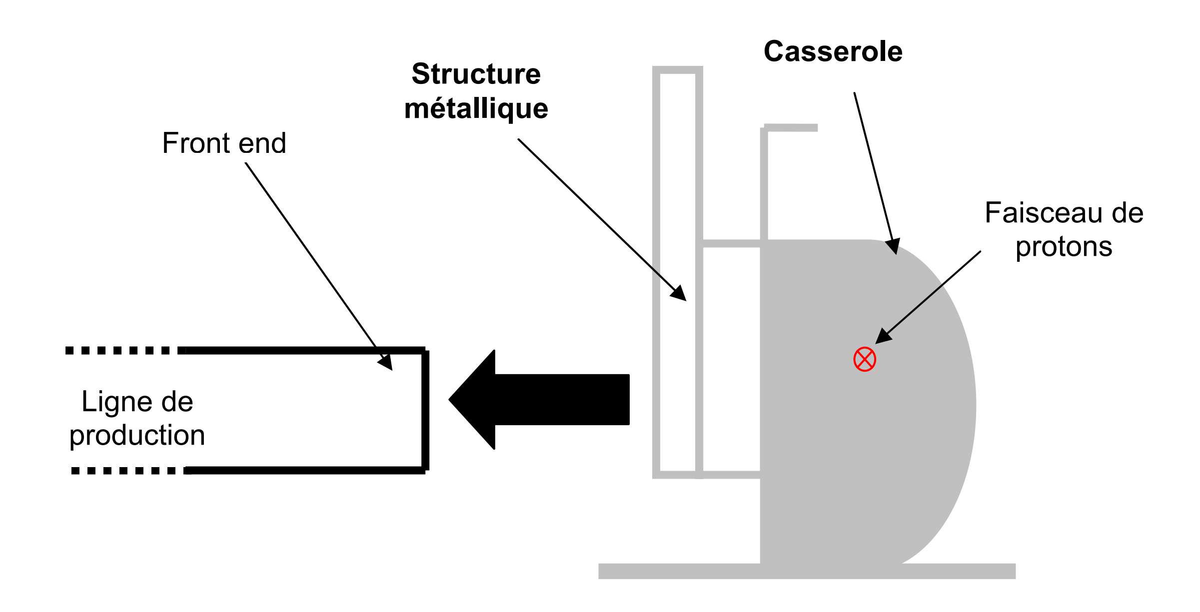


Figure 4 : Schéma d'une cible ISOLDE en position d'irradiation (vue de profil)

A l'intérieur de ce cylindre en aluminium se trouve le volume cible proprement dit, c'est-à-dire un tube d'approximativement vingt centimètres de long (container) constitué de tantale et rempli avec le matériau cible. Celui-ci peut être du type oxyde de calcium, carbonate d'uranium, tantale, étain, niobium, plomb,... Le type de matériau étant déterminé selon les besoins expérimentaux en ions.

La géométrie d'extraction des radioéléments est couramment de type « basique », c'est-à-dire que les radioéléments sont extraits tels quels après leur formation, sans subir le moindre traitement avant d'être menés à l'ionisateur. Leur tri ne s'effectuera que plus tard, au niveau du spectromètre de masse se situant au niveau de la partie fixe de la ligne de production. Une géométrie différente peut être utilisée pour n'extraire que les gaz nobles, ceci à l'aide d'un conduit métallique refroidi. On effectue ainsi une sélection préalable des radioéléments, avant même leur ionisation.



Figure 5 : Géométrie d'extraction de type "basique"

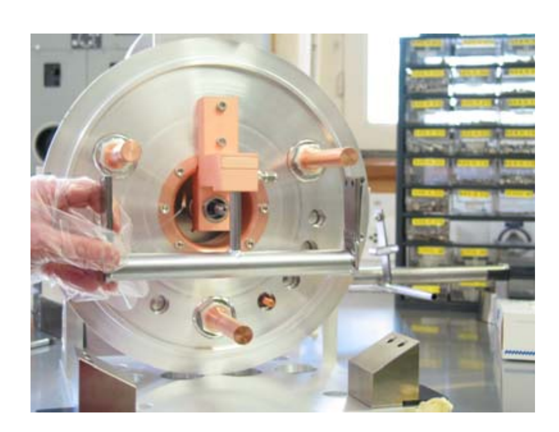


Figure 6: Géométrie d'extraction des gaz nobles

Il existe aussi différents types d'ionisateur :

- L'ionisateur de surface (MK1 et MK4) : Capture d'un électron lorsqu'un atome frappe la parois. Il permet la production d'ions alcalins type Na, K, Cs, Rb…
- L'ionisateur laser (RILIS : Resonance Ionization Laser Ion-Source): En passant dans l'ionisateur, seul l'isotope dont les niveaux atomiques sont en résonance avec la longueur d'onde du laser vont être ionisés. Celui-ci permet donc la production d'ions d'un seul isotope bien défini.
- L'ionisateur plasma (MK3, MK5 et MK7): ionisation des atomes qui traversent le plasma composé d'électrons dont la trajectoire est maintenue par un champs magnétique. Cet ionisateur n'effectue, lui, aucune sélection, il ionise indifféremment tout isotope le traversant.

D'une manière générale, dans une cible, on retrouve :

- Le volume cible (**1**) sur lequel les protons vont frapper et interagir.
- La géométrie d'extraction (**2**) qui permet de mener les radioéléments produits vers l'ionisateur et éventuellement d'effectuer un premier tri (selon le type).
- L'ionisateur (**3**) qui va transformer les radioéléments en ions radioactifs.

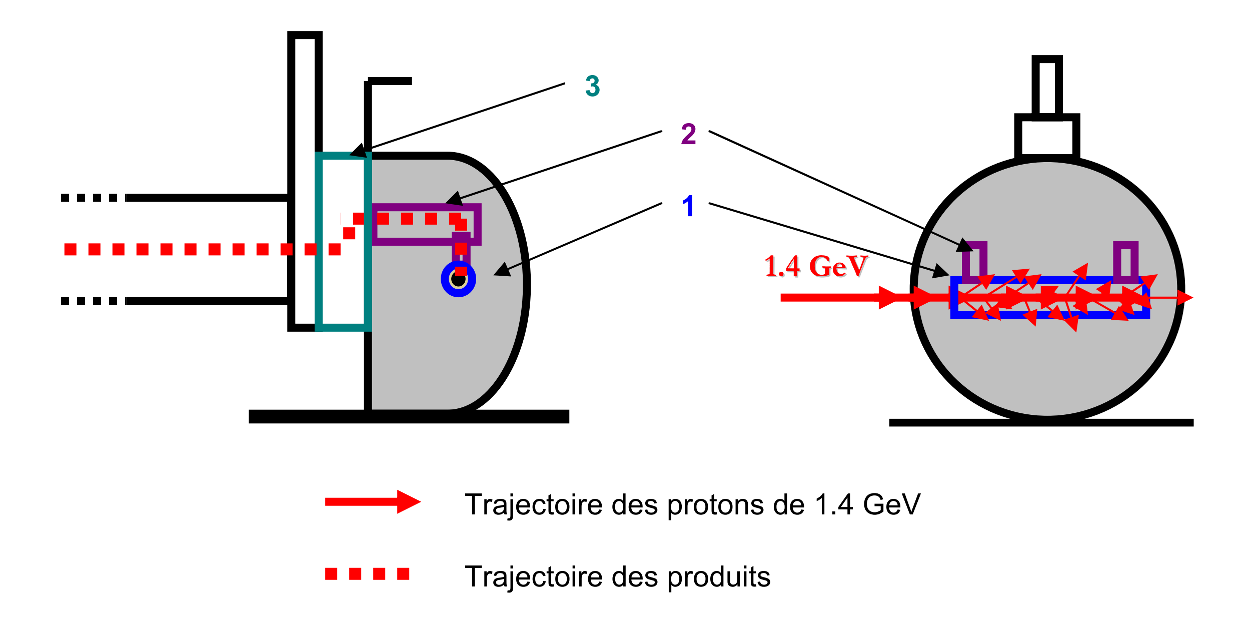


Figure 7 : Schéma de fonctionnement d'une cible ISOLDE (Vue de profil et de face)

Chaque cible est donc caractérisée par son type d'extracteur de radio-isotope et son type d'ionisateur.

On est alors face à une multitude de combinaisons possibles, rien qu'au niveau de l'architecture. En effet, entrent aussi en compte le type de matériau cible, sa densité, et le temps d'irradiation.

3.3. Vie des cibles ISOLDE

Les cibles sont fabriquées dans un atelier, à partir de matériaux non radioactifs (mis a part pour les volumes cibles constitués d'uranium qui sont naturellement radioactifs). Elles sont assemblées une a une, manuellement, en fonction de demandes expérimentales précises.

Les cibles sont irradiées par le faisceau de protons de 1.4 GeV en provenance du PS Booster pendant des durées de l'ordre des quelques jours (durées définies, elles aussi, par les besoins expérimentaux).

Lors de l'irradiation, les protons vont interagir avec le noyau des atomes du volume cible par deux grands processus :

- La spallation : Le proton incident va éjecter des nucléons (neutrons) avec une grande énergie. Ceux-ci pourront, à leur tour, engendrer d'autres spallations (ou mener à des fragmentations). Le noyau résiduel est excité (du type A_o-1 ; A_o-2 ou A_o-3 de manière la plus probable, A_o étant le nombre de masse de l'atome cible.) et émet alors des neutrons de basse énergie (quelques MeV).

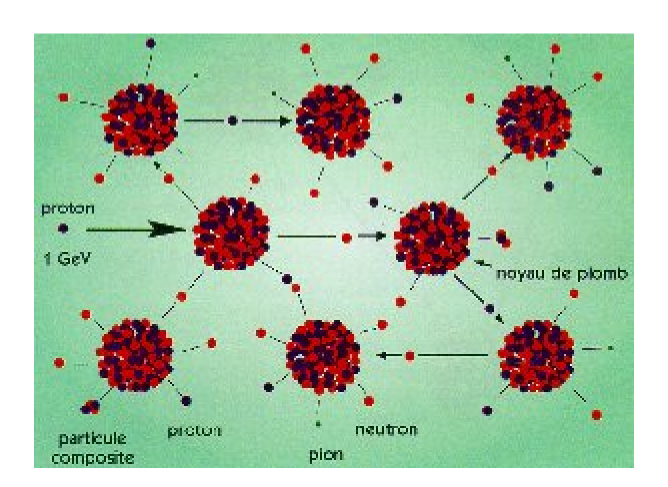


Figure 8 : Processus de spallation

- La fragmentation : Le noyau cible est divisé en deux noyaux résiduels par le proton ou le neutron incident. Ce phénomène ne peut se produire que dans le cas de particules incidentes de haute énergie. Cette division est aussi accompagnée par l'éjection de nucléons. Dans le cas de matériaux cibles en U^{238}, on pourra assister à un phénomène de fission avec un neutron incident rapide.

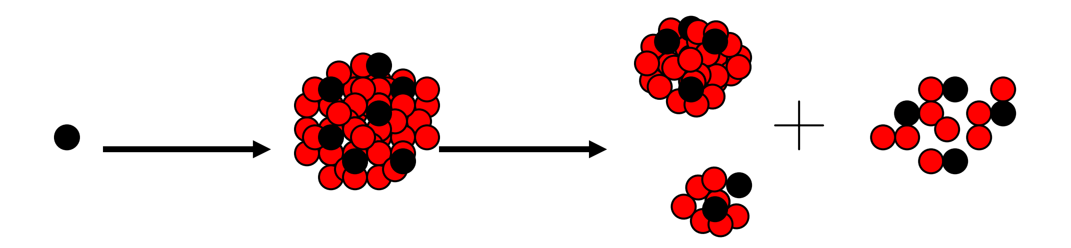


Figure 9 : Processus de fragmentation

Ces deux types d'interactions permettent la production d'isotopes radioactifs au cœur de la cible. Ceux-ci seront, comme nous l'avons expliqué auparavant, ionisés, puis utilisés à des fins expérimentales. Cependant, ces deux processus mènent aussi à l'activation de tous les constituants environnant le volume cible. Cette activation est due aux réactions en cascades. De ce fait, chaque constituant de la cible est plus ou moins radioactif suite à cette activation mais aussi à une éventuelle contamination.

Suite à la contamination du front end (lieu de fixation de la cible en début de ligne de production- partie fixe) par le dépôt d'une partie des radioéléments produits, toute manipulation de cible (mise en place ou retrait) doit se faire à l'aide de robots



Figure 10: Photo des robots de manipulation des deux lignes de production.

De plus, suite a l'irradiation, le fort débit de dose résultant de l'activation des cibles oblige un entreposage à proximité du lieu d'irradiation, pendant environ un an, dans des placards situés le long du couloir, à l'endroit où manoeuvrent les robots. Ceci afin de permettre la décroissance des radioéléments de courte période et donc une baisse du débit de dose en provenance de ces cibles.



Figure 11: Placards d'entreposage des cibles.

Passée cette année de décroissance, les cibles sont déplacées vers un local d'entreposage situé dans l'enceinte du CERN, en attente d'une élimination vers le centre national Suisse d'entreposage des déchets radioactifs.

Problématique

1. Risques associés aux cibles

Les cibles à éliminer combinent deux types de risques à la fois :

- Tout d'abord un risque d'irradiation non négligeable dû à un fort débit de dose à proximité de la cible. Ceci découle de l'activation du volume cible et des structures environnantes suite à l'irradiation par le faisceau de proton. Ainsi, on sera face à des débits de dose de l'ordre de 100 à 200 $\mu Sv.h^{-1}$ à 10 cm de la cible lors de nos manipulations nécessaires à cette étude.
- Ensuite, et surtout, un risque de dispersion de radioéléments du fait de la contamination importante de l'intérieur des cibles. Toute manipulation de ces structures expose donc le personnel a un risque d'inhalation de la radioactivité ou de contamination par blessure.

Diverses mesures de précaution sont à prendre par les opérateurs dès qu'ils manipulent les cibles, tant au niveau du risque d'irradiation que de contamination. Ceci rend toute intervention sur cible difficile. Ces mesures de précaution seront détaillées au chapitre « Méthodologie de la validation ».

2. Législation Suisse

La législation Suisse est, en grande partie similaire, sur le fond, à celle de la France concernant de nombreux points. Cependant, dans le domaine des déchets radioactifs, on relèvera comme différence principale le fait que sur le territoire Helvétique, tout déchet ayant été en contact avec de la radioactivité n'est pas forcement considéré comme déchet radioactif.
En effet, la Suisse a choisi de classer comme radioactifs les déchets sortant de zone, seulement si ils dépassent certaines limites fixées par le Conseil fédéral suisse et présentées dans L'Ordonnance sur la radioprotection datant du 22 juin 1994. [1]
Ces limites, propres à chaque radioélément, sont au nombre de trois: limite sur l'activité spécifique, limite sur l'activité totale et limite sur le débit de dose à 10 centimètres. Pour rentrer dans le champ de l'ordonnance ci-dessus, le déchet devra dépasser, en même temps, les deux limites sur les activités spécifique et totale, ou alors la seule limite sur le débit de dose.
Si il ne dépasse aucune limite, il sera éliminé selon le procédé commun à tous les déchets non radioactifs.

En ce qui concerne les cibles ISOLDE, les limites fixées par la législation suisse pour le classement des déchets sont dépassées suite à leur forte activité. Ainsi ces cibles sont considérées comme déchets radioactifs et seront traitées en tant que tels.

L'élimination des cibles ISOLDE rentre dans le cadre du projet de stockage définitif en profondeur des déchets de faible et moyenne activité en provenance des centrales nucléaires, de la médecine, de l'industrie et, bien sûr, de la recherche.

2.1. Projet de stockage des déchets radioactifs

Face à l'accumulation des déchets radioactifs, la Suisse a opté pour le stockage définitif en profondeur. La particularité de ce stockage est qu'il sera toujours de type géologique et ce, pour n'importe quel déchet radioactif.

Ainsi, les déchets de haute et moyenne activité à vie longue (combustible irradié et déchets de retraitement), seront stockés dans les couches géologiques profondes avec accès par un tunnel vertical.

En ce qui concerne les déchets de faible et moyenne activité (le cas de nos cibles), ils seront, eux, stockés dans des anciennes mines. Le site de Wellenberg dans le canton de Nidwald avait été retenu, mais suite au résultat négatif du référendum cantonal en Septembre 2002 le projet n'a pas pu aboutir. Il n'y a donc, à ce jour, aucun site défini pour le stockage de ce type de déchets.

La Suisse a opté pour une solution d'entreposage provisoire en attendant de résoudre la problématique du stockage définitif en profondeur. En effet, depuis 1992, le BZL (BunderZwischenLager, Entrepôt fédéral de déchets radioactifs) est en service sur l'aire « est » de l'Institut Paul Scherrer (PSI) qui en est le régisseur pour le compte de l'Office Fédéral de la Santé Publique. Là bas sont récoltés et entreposés tous les déchets radioactifs de moyenne et faible activité en provenance de la médecine, de la recherche et de l'industrie. Ce centre d'entreposage étant le stade ultime avant le futur stockage en profondeur, les déchets devrons déjà être conditionnés de manière définitive au moment de l'entreposage. Ainsi, lorsque un site de stockage en profondeur aura été retenu, un simple déplacement vers le lieu de stockage sera nécessaire, sans remaniement du conditionnement.

2.2. Requêtes de PSI

L'Institut Paul Scherrer est l'organisme qui prend en charge et gère ce centre. Le conditionnement préalable à l'entreposage des déchets se fait aussi par cet organisme. Il existe donc différentes formalités auxquelles il faut répondre pour qu'une élimination correcte soit possible.

Dans notre cas, après une rencontre et un échange avec les responsables appartenant à PSI, il ressort que, pour chaque cible à évacuer, il sera demandé :

- Un inventaire de tous les émetteurs α, β et γ dont la période est supérieure à 2 ans avec une précision d'un facteur 10 sur l'activité des radioéléments présents.
- Une séparation des éléments contenant des émetteurs α afin de pouvoir les répartir entre les containers et ainsi répondre aux limitations prévues par le conditionnement.
- Une séparation préalable des structures en aluminium car celles-ci seront ensuite fondues dans des galettes en graphite pour réduire la surface de contact du métal avec le béton. Les structures en aluminium devront être délivrées à PSI sous forme de pièces n'excédant pas 230 mm.
- Une séparation des éléments organiques type joints plastiques, pourra être faite et ce, en vu de les incinérer (PSI possédant un four plasma).

Ces demandes seront revues tous les 5 ans afin d'atteindre une optimisation dans la méthode d'élimination.

Tout ceci constitue donc des conditions qu'il faudra remplir et dont on devra tenir compte au moment de l'élimination. Cependant, concernant notre étude, on ne s'intéressera qu'au premier point des requêtes de PSI, c'est-à-dire effectuer un inventaire radiologique avec un facteur 10 sur la précision des valeurs d'activité.

On comprend alors aisément que l'évacuation ne consistera pas en une simple caractérisation et expédition de la cible dans son ensemble au centre d'entreposage. Il faudra, en réalité, démonter sous hotte ventilée, les différents éléments de chaque cible à évacuer pour pouvoir effectuer les différentes séparations demandées par PSI.

3. Estimation de l'inventaire radiologique

Le but de cette caractérisation est de connaître le contenu et l'activité associés à ces déchets pour pouvoir respecter les limites des centres de stockage intermédiaire et définitif. Cependant, l'inventaire radiologique va aussi permettre de déterminer les risques que présentent ces cibles pour toutes les opérations nécessaires à leur préparation, c'est-à-dire l'entreposage, les manipulations et le transport.

Il existe deux moyens d'effectuer cette caractérisation : l'analyse spectrométrique et la simulation par un code de calcul.

Théoriquement, la méthode spectrométrique est la plus simple pour accéder à la composition isotopique de la cible et à son activité. Malheureusement, dans notre cas, les divers critères à prendre en compte vont particulièrement compliquer cette méthode et vont la rendre impossible à mettre en œuvre.

3.1. Spectrométrie

L'analyse spectrométrique est le seul moyen physique de caractériser une source de rayonnements. Cela consiste à placer un échantillon devant un détecteur afin de compter un nombre de coups pendant un temps donné. Un logiciel définira alors les radioéléments contenus dans l'échantillon étudié et leurs activités propres.

Il existe deux types de spectrométries : la spectrométrie γ qui est la méthode la plus courante (technique que l'on abordera de manière plus détaillée au chapitre « Spectrométrie gamma ») et la spectrométrie α qui est beaucoup plus ardue à mettre en œuvre du fait du caractère difficilement détectable de ce type de particules (Mise en oeuvre expliquée au chapitre « Méthodologie de la validation »). En ce qui concerne les émetteurs β, un comptage peut être effectué mais toute caractérisation est impossible.

Etant donné le fait que chaque cible est unique (architecture, matériau cible, temps d'irradiation, temps de décroissance…) il faudrait, au moins, effectuer une analyse spectrométrique γ de chaque cible à évacuer. Or l'analyse d'une cible dans son ensemble est déjà, d'emblé, impossible pour des raisons d'incohérence. En effet, la forte activité du volume cible masque la contribution des autres structures et fausse les activités du reste de la cible. Il faudrait donc effectuer une analyse spectrométrique séparée de chaque élément de la cible afin de déterminer la composition de chacun. On se retrouve donc face à une multitude d'éléments à mesurer pour une seule cible, chiffre multiplié par le nombre important de cibles à évacuer (environ 350).

Ce type d'analyse spectrométrique est une méthode fiable mais qui devient laborieuse à mettre en place de manière systématique du fait du temps d'acquisition qui peut être long. De plus l'application de cette méthode à de multiples échantillons nécessiterait la mobilisation de personnel dont le temps serait entièrement dédié à ces études. Ces individus seraient donc en permanente manipulation des structures des cibles et donc soumis à une irradiation répétée et exposé en permanence à un risque de contamination.

L'analyse de chaque structure des cibles ISOLDE est donc une méthode pratiquement impossible à mettre en place car trop fastidieuse, mais aussi trop coûteuse tant au niveau dosimétrique que financier.

3.2. Apport de la méthode par simulation

On essaiera donc de remplacer les spectrométries gamma par un code de calcul. Pour pouvoir l'utiliser, il faudra être sûr qu'il mène à des résultats de caractérisation radiologique et de calcul d'activité cohérents avec la réalité. Cependant, il faudra garder à l'esprit que l'on effectue ces analyses dans le but d'éliminer des déchets. On ne cherche donc pas une précision poussée sur la valeur de l'activité mais plutôt sur la composition radiologique des structures analysées.

On essaiera de démontrer que l'inventaire radiologique par simulation n'est pas plus imprécis que la méthode par spectrométrie gamma et que cette méthode convient aux limites de précision imposées par PSI sur la valeur d'activité.

L'utilisation de ce code de calcul va nous apporter différents bénéfices. Tout d'abord, grâce à cette méthode, on pourra s'affranchir des examens spectrométriques, et donc de toutes les manipulations relatives à la préparation de l'élément à analyser (prélèvement des éléments, transport, mesure des dimensions et pesée). Ainsi, on pourra éviter l'irradiation de l'opérateur de spectrométrie et tous les risques de contamination qu'il encoure. De plus, il n'y aura pas la nécessité de placer du personnel dédié à ces analyses spectrométriques.

Ensuite, cette méthode accordera un gain de temps énorme dans la caractérisation des structures des cibles à analyser. De ce fait, leur évacuation sera plus rapide, ce qui permettra de réduire significativement leur nombre dans le local d'entreposage situé au CERN et ainsi baisser l'irradiation du personnel intervenant dans celui-ci.

Enfin, la caractérisation par simulation permettra une estimation de l'activité des isotopes difficilement ou non détectables par analyse spectrométrique : émetteurs β purs et α purs.

Méthodologie de la validation

1. Explication du principe

Pour valider de manière correcte le code de calcul que nous comptons utiliser, nous allons appliquer une certaine méthodologie.

Le principe de base de celle-ci sera de mener, en parallèle, et sur les mêmes types de structures, une étude spectrométrique et une caractérisation à l'aide d'un code de calcul. Ainsi, on pourra comparer un résultat « physique » mesuré à partir de l'échantillon réel à un résultat calculé à partir de la simulation de ce même échantillon. On s'assurera ensuite de la cohérence des résultats obtenus par ces deux méthodes.

On va ensuite étendre ce raisonnement à de multiples échantillons. Plus leur nombre sera élevé, plus on arrivera à reconstituer une « empreinte » radiologique précise des différents éléments constituant les cibles à évacuer. De plus, ceci permettra de vérifier sur un grand nombre d'échantillons, la cohérence des résultats de simulation avec les résultats spectrométriques.

1.1 Prélèvement des échantillons

Tout prélèvement de fragment de cible se fera sous hotte ventilée, la personne portera une tenue Tyvek et des gants plastiques pour prévenir une éventuelle contamination. Le port du dosimètre personnel est, bien sûr, obligatoire afin de pouvoir comptabiliser sur le système de dosimétrie les doses intégrées par l'opérateur pendant la manipulation. Le port d'un dosimètre opérationnel est aussi nécessaire pour contrôler l'irradiation de la personne en temps réel.

Ainsi paré, l'opérateur prendra garde d'effectuer ses prélèvements assez rapidement et avec un retrait constant par rapport à la cible autopsiée et ce, afin de réduire au maximum la dose intégrée.



Figure 12: Prélèvement des échantillons

Les cibles retenues pour l'étude sont toutes âgées d'au moins 5 ans, ce qui a permis à leur activité de décroître de manière importante. Ce choix a pour but d'irradier au minimum les opérateurs qui prélèveront les échantillons à étudier. De toutes façons, même lors de la mise en place de la procédure d'élimination, on ne traitera jamais de cible plus jeune, et ce, toujours dans le souci de baisser au maximum l'irradiation des opérateurs qui les manipulent.

A partir du critère de décroissance, les cibles prises en compte pour notre étude ont été choisies avec des volumes cibles de composition différentes, des types de structures différentes (géométries d'extraction et ionisateur de différents models), de temps d'irradiation et de décroissance différents. Leurs caractéristiques sont décrites en Annexe 2.

Les échantillons ont été prélevés sur les cibles suivant des critères bien définis, eux aussi. On a choisi des échantillons par rapport à leur localisation sur la cible (amont/aval) et selon leur composition. On a donc essayé de couvrir au maximum la plage de diversité des cibles. Les différentes caractéristiques des échantillons sont décrites en Annexe 3.

Une fois prélevés, les échantillons subiront un bain dans une solution de décontamination, puis seront frottés afin de s'affranchir au mieux de la contamination labile. Nous les placerons ensuite dans des sachets plastiques pour plus de sûreté.



Figure 13: Echantillons prélevés et bac de décontamination des échantillons

1.2 Spectrométries

Pour ce qui est de l'étude spectrométrique, on différentie les analyses des émetteurs α et γ. Le principe de détection et de caractérisation est le même, cependant le premier type d'analyse (α) est le plus laborieux. En effet, du fait que ces particules possèdent un parcours très faible dans la matière, elles sont difficilement détectables. C'est pour cela que l'échantillon à analyser nécessite une longue préparation afin de réduire au maximum l'effet d'auto absorption. Il faut tout d'abord limer ou dissoudre un petit morceau de l'élément à analyser à l'aide d'acide. La substance obtenue sera disposée par électro-dépôt sur un support afin que la couche à mesurer soit la plus fine possible (limitation de l'auto absorption). Cela représente donc un long processus de préparation chimique, impossible à mettre en œuvre face à un nombre élevé d'échantillons à analyser.

La spectrométrie γ, elle, ne nécessite aucun traitement de l'élément à analyser. Celui-ci sera disposé tel quel devant le détecteur.

Pour ce qui est des émetteurs β, leur caractérisation est plus que complexe étant donné que le spectre d'émission n'est pas constitué de différentes raies mais d'un spectre continu. Celui-ci est formé par l'énergie portée par les électrons (Cette énergie résultant d'un partage entre les électrons et les muons émis). Chaque spectre est caractéristique d'un radioélément, mais à partir du moment où il a plusieurs radionucléides, les spectres s'additionnent et aucune caractérisation n'est possible.

C'est pour cela que nous nous limiterons seulement à une recherche des émetteurs γ, et nous ne prendrons en compte que ces éléments pour l'étude. De là, si nous arrivons a prouver que le code de calcul est valide pour les émetteurs γ, nous admettrons qu'il l'est aussi pour les émetteurs α et β. Nous pourrions, par la suite, mesurer, par spectrométrie α, certains éléments pris en compte dans l'étude, pour preuve du bon fonctionnement du code de calcul.

1.3. Présentation de FLUKA

FLUKA est le nom du code de calcul qui sera utilisé pour notre étude. Ce programme sert à calculer le transport des particules et leurs interactions avec la matière. Il est basé sur la méthode Monte Carlo.

1.3.1 Historique

Fluka a été crée au CERN, en 1962, pour le dimensionnement de protections contre les protons de haute énergie dans le projet de l'accélérateur SPS (Super Proton Synchrotron).
Ce programme s'appuyait alors sur le calcul de cascades hadroniques, d'où le nom FLUKA pour « FLUctuating KAscade ». Ceci représente sa première version (1962-1978)
En 1978, la deuxième version de Fluka est développée par le CERN, en partenariat avec les universités de Helsinki et Leipzig. Le code s'étend au calcul des collisions hadron hadron et hadron nucléon.
En 1988, la troisième et dernière version est mise en œuvre avec la collaboration de la section Milan de l'INFN (Istituto Nazional di Fisica Nucleare). Le programme devient de plus en plus précis, et ses champs d'application s'étendent au delà du simple calcul de protection (calorimétrie, calcul d'activation, dosimétrie, étude des rayons cosmiques, transmutation de déchets).
Fluka peut simuler, avec une grande précision, prés de 60 particules différentes, incluant les photons et les électrons de 1KeV à plusieurs TeV, mais aussi les neutrinos, les muons, les hadrons, les ions lourds et toutes les antiparticules correspondantes.

Grâce à ce programme, on peut modéliser des géométries d'irradiation complexes, ce qui va permettre d'accéder à des résultats précis. Ainsi, divers types de figures géométriques peuvent être définies (plans, parallélépipède, sphère, cylindre, ellipsoïde), puis combinées pour accéder à l'architecture voulue.
La détermination des matériaux composant la géométrie est possible a l'aide des 25 types de matériaux déjà pré-établis dans Fluka. Cependant il existe, bien sûr, la possibilité d'en créer de nouveaux ou de définir des mélanges de matériaux.

1.3.2 Limites associées à la simulation

Les limites de simulation ont pour conséquence commune une augmentation des incertitudes liées aux résultats et d'éventuelles incohérences. Ces limites doivent être connues pour être prises en compte lors de l'interprétation des résultats.
Tout d'abord, on est face à la limite propre à tous les programmes de simulation: le temps de calcul.
Celui-ci dépend du nombre de particules simulées, c'est-à-dire dans notre cas, du nombre de protons que l'on veut faire interagir avec la cible. Or on sait que ce nombre de protons va aussi déterminer l'incertitude sur les résultats (déviation relative).

En effet, en théorie, la précision varie comme $\frac{1}{\sqrt{N}}$ où N est le nombre de particules simulées.

Ainsi, en multipliant par 4 le nombre de particules simulées, les incertitudes devraient baisser de moitié. Cependant, quadrupler le nombre de particules, signifie aussi quadrupler le temps de calcul.
Il faudra donc faire un compromis entre la précision recherchée et le temps de calcul, afin d'aboutir à des valeurs honorables, pour chacun de ces deux facteurs.

Ensuite, on sait que la version 2003 de FLUKA (utilisées pour nos tests) possède une lacune sur les calculs de filiation. En effet, ceux-ci sont correctement effectués jusqu'à la deuxième génération d'isotope créée, mais au delà, les autres générations ne sont pas prises en compte. Ceci induit des erreurs qui pourront peut-être expliquer quelques incohérences dans nos résultats de test. Toujours est-il que lors de son utilisation en routine, FLUKA aura bénéficié de la dernière version qui corrige ces lacunes et prends en compte l'ensemble des générations pour ses calculs.

Des incertitudes sur les résultats sont de plus ajoutées suite aux simplifications géométriques effectuées lors de la modélisation. En effet la complexité de l'architecture réelle des cibles ne permet pas une reproduction exacte.

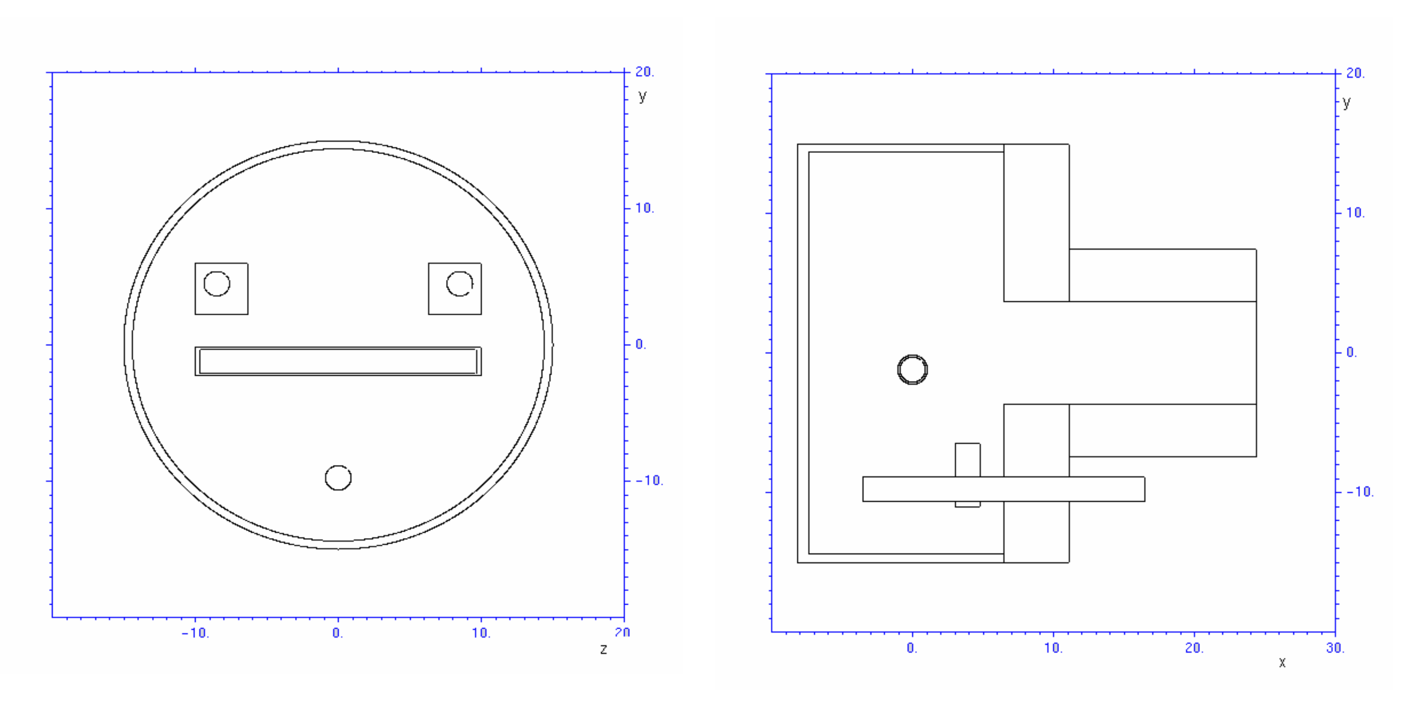


Figure 14: Géométrie de modélisation utilisée pour la simulation de la cible 123 (CaO)

Enfin, il existe aussi des incertitudes relatives aux matériaux simulés. En effet, même si tous les matériaux peuvent être modélisés de manière exacte par FLUKA, il y a cependant, des incertitudes au niveau de la composition exacte des matériaux utilisés pour l'assemblage des cibles. Un listing actuel nous a été communiqué par le service de montage (Annexe 3) qui utilise le même fournisseur de pièces depuis 1998 (date d'irradiation des premières cibles à évacuer), mais celui-ci ne peut pas nous garantir que la composition des matériaux était exactement la même il y a 7 ans.

1.3.3 Mise en œuvre

La description de l'utilisation de FLUKA est disponible dans son manuel d'utilisation. [2]
Une simulation se définit en trois grandes phases :

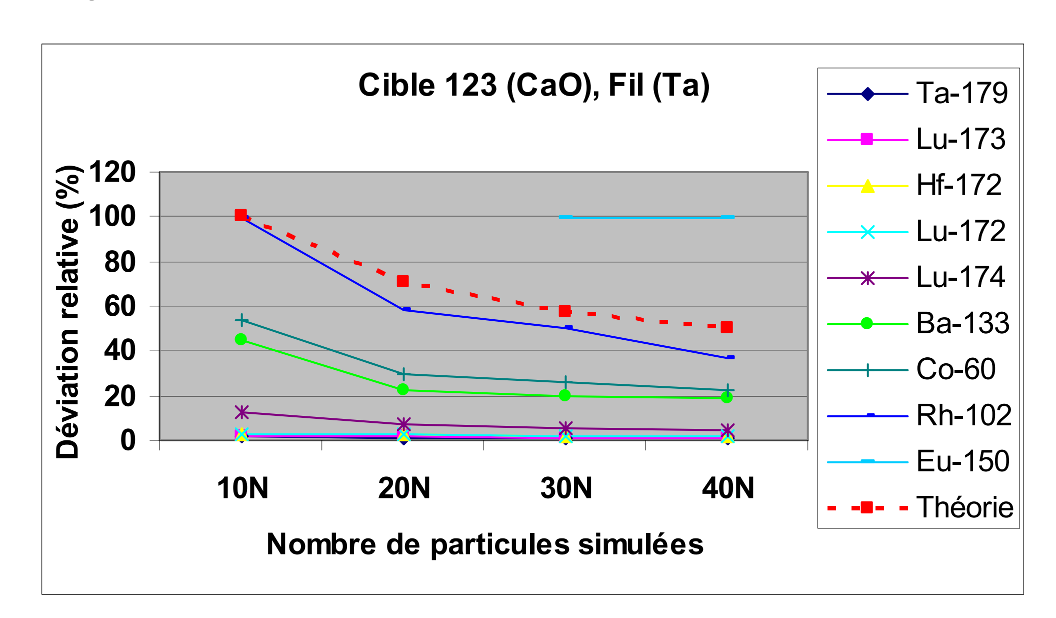
- Une phase création d'un fichier « input »
- Une phase de calcul
- Une phase de récupération d'un fichier « output » comportant les résultats.

La phase de création d'un fichier « input » est la plus laborieuse et la plus décisive car c'est à ce moment que sont définis tous les paramètres de la simulation et qui peut donc être source de bon nombre d'erreurs.
Ce fichier va comporter, en premier lieu, la **définition du faisceau d'irradiation** lui-même (type de particule, énergie, profil du faisceau) et sa position dans un repère (x ; y ; z).
Ensuite, on va s'intéresser à **définir l'architecture de modélisation et sa composition.**
On effectue la liste des corps géométriques que l'on va utiliser et leur position propre.
On va alors définir les matériaux utilisés et les assigner aux zones d'intérêt que l'on aura défini par combinaison des différentes primitives géométriques listées auparavant.
Une fois que toute la géométrie d'irradiation est définie, il reste à **préciser le type de résultats désiré et la zone où le calcul doit être effectué.**
Pour finir, on tabule **le nombre de particules** que l'on souhaite simuler, qui correspond, dans notre cas, au nombre de protons qui ont réellement interagi avec la cible étudiée. Plus le nombre de particules est important, plus le temps de calcul sera long.

Vient ensuite la phase de calcul qui requière, de la part de l'utilisateur, la tabulation du nom et du nombre de fichiers à calculer.
C'est donc à ce moment là aussi que l'on va influencer le temps de calcul et surtout la précision des résultats. En effet, un fichier « input » seul, requière un temps de calcul t pour les N particules inscrites dans celui-ci. Si on lance quatre fois ce fichier, le temps de calcul sera égal à $4t$ car on aura simulé $4N$ particules. Cependant, les incertitudes sur les résultats en seront réduites de moitié.

On a comme cela effectué quelques tests pour pouvoir déterminer la précision nécessaire aux résultats et ainsi avoir une idée du temps de calcul qu'il faudra prévoir lors des simulations de routine. On a donc lancé le calcul de 40 fichiers de $N = 5 \times 10^6$ protons et recueilli les résultats à $10N$, $20N$, $30N$ et $40N$.

Figure 15: Déviation relative en fonction du nombre de particules simulées



On remarque alors que, les déviations relatives baissent avec l'augmentation du nombre de particules simulées. On constate aussi l'apparition d'un nouveau radioélément dans le listing des isotopes produits (^{150}Eu). Ceci s'explique par le fait que la statistique ayant été augmentée, on a plus de « chance » de voir les éléments très faiblement produits. Cependant, sa déviation relative reste très importante (99%). Il faudrait encore augmenter le nombre de particules simulées pour préciser le résultat, mais nous sommes toujours limités par le temps de calcul. A titre informatif, le temps nécessaire au calcul des 40 fichiers est de l'ordre de quelques jours.

On constate aussi que la baisse des déviations relatives ne suit pas exactement la théorie du $\frac{1}{\sqrt{N}}$

Ceci est dû à un problème de statistique. En effet, la théorie se base sur une statistique très élevée, or dans notre cas, on effectue le calcul sur de petits échantillons qui ne présentent donc qu'une faible activité de chaque isotope crée. Si on effectue le calcul, sur un plus gros volume, la statistique serait meilleure pour chaque isotope, et donc la courbe plus proche de la statistique.

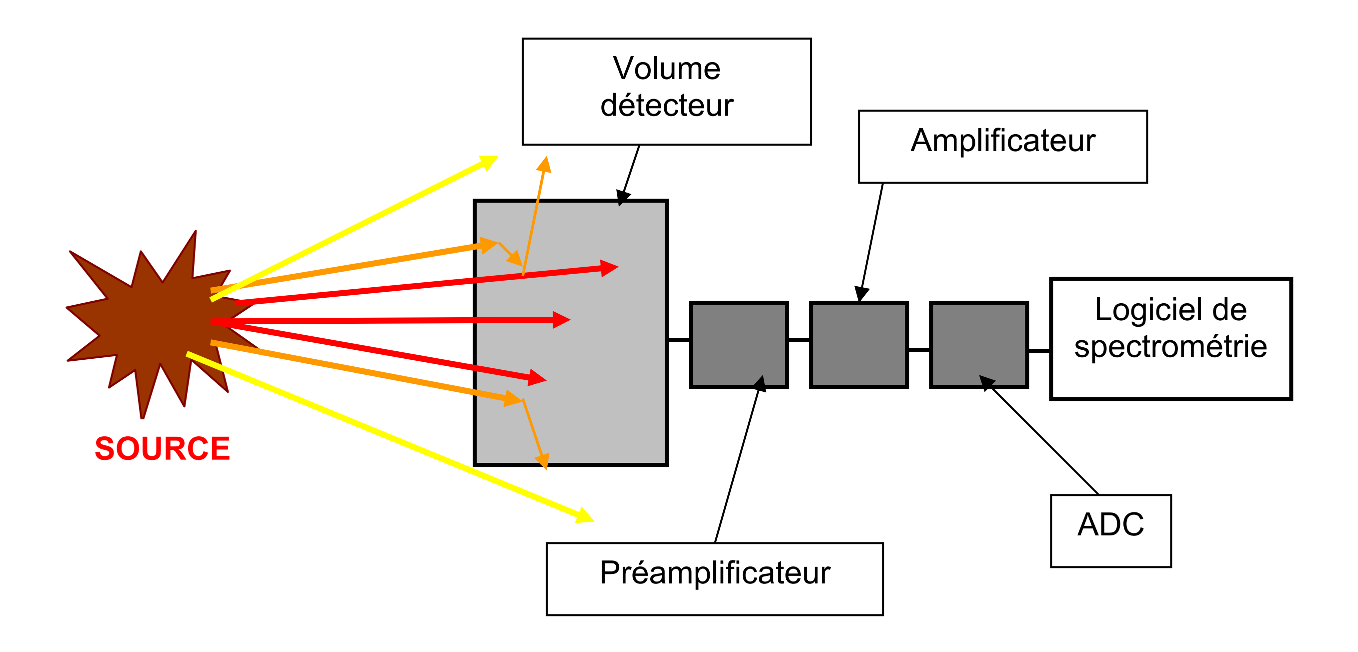
A la fin du calcul, FLUKA nous délivre un fichier « output » pour chaque fichier calculé. Celui-ci contient la liste des radioéléments crées et leur activité à la fin de l'irradiation. Ces données doivent donc être traitées par un programme supplémentaire qui va effectuer le calcul de décroissance entre la fin de l'irradiation et la date de calcul choisi.

Spectrométrie gamma

Les résultats obtenus par spectrométrie sont des résultats physiques, car issus d'une mesure et donc représentatifs de la réalité.

1. Principe de la spectrométrie gamma

Le but d'une spectrométrie est de connaître la distribution en énergie des rayonnements gamma émis par une source radioactive. On va recueillir l'énergie véhiculée par ces rayonnements à l'aide d'un volume détecteur approprié dans lequel les photons vont interagir et être transformés en signal électrique.
A la sortie du détecteur, on trouve un préamplificateur suivit d'un amplificateur qui vont, tous deux, augmenter la taille du signal afin qu'il soit perceptible par l'ADC (Analogique Digital Converter). Celui-ci va transformer le signal analogique en signal numérique pour l'envoyer vers le logiciel de spectrométrie.
La taille du signal (c'est-à-dire sa charge électrique) est proportionnelle à l'énergie du rayonnement ayant interagi dans le volume détecteur. Les signaux (ou coups) vont être « classés » afin de former un spectre en énergie. A partir de celui-ci, le logiciel de spectrométrie va déterminer la composition isotopique de la source et l'activité de chacun de ces radioéléments présents.



L'énergie du rayonnement est totalement absorbée par le volume détecteur, même suite à diverses interactions. Cet événement va donner lieu au **pic d'absorption totale.**

L'énergie n'est pas totalement déposée dans le volume détecteur car il y a échappement d'un rayonnement diffusé. Ce phénomène crée le **fond continu.**

L'énergie n'est pas du tout déposée dans le volume détecteur. Le rayonnement n'est pas pris en compte.

Figure 16: Schéma du principe de la spectrométrie γ

Le spectre obtenu traduit les différentes interactions élémentaires du rayonnement dans le détecteur.

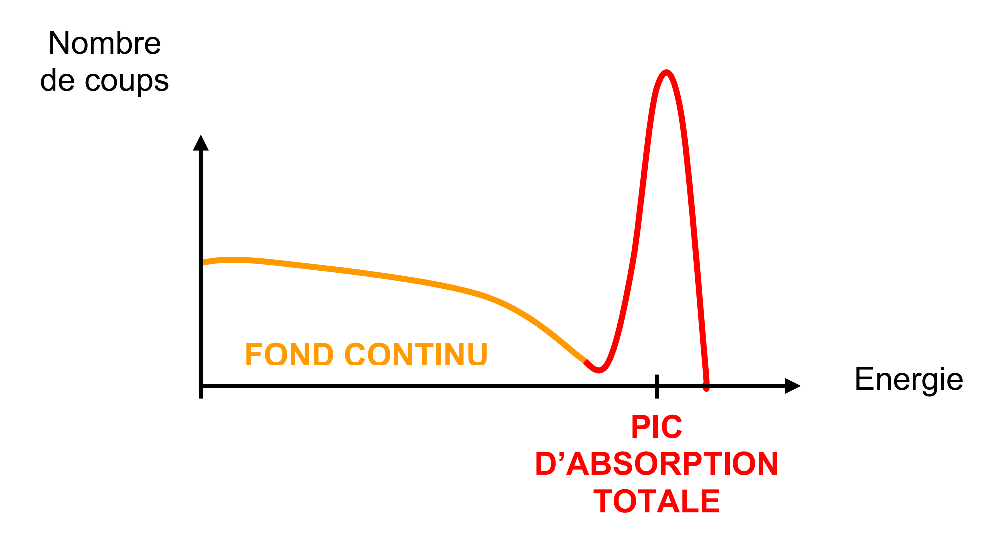


Figure 17: Spectre obtenu pour un type de rayonnement

Le pic d'absorption totale est principalement formé par l'absorption photoélectrique. La diffusion Compton contribue à la formation de ce pic dans le seul cas où le photon diffusé reste à l'intérieur du volume détecteur.
Le pic d'absorption totale est la seule partie intéressante du spectre car c'est lui qui caractérise le radioélément émetteur du rayonnement.
Le fond continu, lui, constitue un phénomène parasite qui peut masquer d'autres pics d'absorption totale. Il est formé principalement par la diffusion Compton

2. Acquisition d'un spectre

On cherchera, avec la distance source-détecteur, à baisser le temps mort. Celui-ci se définit comme le temps pendant lequel la chaîne de détection traite une information et est donc indisponible. A temps mort trop élevé, la chaîne de détection sature. Pour éviter cela, on éloignera le plus possible la source du détecteur. Cependant, il faudra aussi veiller à conserver un taux de comptage correct. Ainsi, on cherchera, un temps mort inférieur à 1%, si cela est possible.

Un temps d'acquisition important permet au détecteur d'enregistrer plus de coups et donc d'augmenter la statistique de comptage. Ceci a pour but de baisser l'incertitude liée à tous les calculs qui seront fait, ensuite, par le logiciel de spectrométrie dans la phase « analyse » et donc d'affiner les résultats d'activité (**aspect quantitatif**). De plus, l'augmentation du temps d'acquisition permet aussi de baisser les MDA (Minimum Detectable Activity, **définie au paragraphe…**) c'est-à-dire les activités minimum détectables. On pourra donc révéler la présence de radioéléments faiblement présents et ainsi affiner, cette fois-ci, la composition de l'échantillon source (**aspect qualitatif**).

Prenons pour exemple le même échantillon (Bouchon aluminium de la cible 123) mesuré avec des temps d'acquisition différents.

Table 1: Activité de différents radioéléments accompagnées de leurs incertitudes et MDA pour des temps d'acquisition de 15 minutes et 15 heures.

Radio éléments détectés	Activité $Bq.g^{-1}$		Incertitude sur l'activité %		MDA $Bq.g^{-1}$	
	900s	54000s	900s	54000s	900s	54000s
^{22}Na	953	855	9.9	9.8	4.3	0.3
^{54}Mn	24.4	22	28.3	10.7	7.6	0.82
^{60}Co	NON DETECTE	1.17	NON DETECTE	14.1	NON CALCULE	0.16

On remarque que la MDA des deux éléments déjà détectés a baissée environ d'un facteur 10. De ce fait, l'incertitude sur le calcul d'activité de ces deux éléments a baissée, elle aussi.
De plus, on assiste à la détection d'un nouveau radioélément. En effet, les MDA ayant baissées, le ^{60}Co est dorénavant détectable, malgré sa faible quantité dans l'échantillon.
Si on augmente encore le temps d'acquisition, on pourra davantage accentuer la baisse des incertitudes et des MDA et ainsi assister à la manifestation d'autres radioéléments encore plus faiblement présents. Cependant, la détection d'infimes activités n'a aucun intérêt dans notre cas étant donné que nos résultats demandent une précision d'un facteur 10 seulement et que leur application reste du domaine de la gestion de déchets.

De plus le paramètre du temps d'acquisition est limité par sa faisabilité. En effet, un temps d'acquisition excessivement long devient impossible à mettre en œuvre si l'on possède un nombre important d'échantillons à analyser.
On se contentera donc de temps d'acquisition de l'ordre de 15h (environ une nuit), ce qui est largement suffisant pour nos études spectrométriques.

2.1. Détecteurs utilisés

On utilise, pour l'analyse de nos échantillons, deux détecteurs : Ge1 (Volume sensible de 172 cm^3, efficacité de 40% à 1332 KeV) et Ge5 (Volume sensible de 94 cm^3, efficacité de 20% à 1332 KeV). Leur géométrie est différente mais leurs performances sensiblement identiques. Ce sont deux détecteurs germanium de type coaxial refroidi a l'azote liquide.
Le matériau est un semi-conducteur, c'est-à-dire que sa bande interdite (située entre la bande de valence et la bande de conduction) est peu importante (de l'ordre de quelque eV)
Le cristal est polarisé pour permettre la migration de la charge électrique crée par l'ionisation et ce, afin de détecter le rayonnement ayant interagi.
Les avantages de ce type de détecteur sont sa haute résolution, c'est-à-dire sa capacité à discriminer deux signaux, et sa bonne efficacité. Celle-ci se définit, en théorie, comme étant le rapport du nombre de coups comptés par la chaîne de détection sur le nombre de rayonnements ayant réellement interagit avec le détecteur. Plus le résultat est proche de 1, plus l'efficacité est bonne. Cependant, dans la pratique, pour des raison de facilité, elle se définit comme la comparaison avec celle d'un scintillateur NaI de taille 7.5 x 7.5 cm.
De plus grâce au refroidissement par l'azote liquide, ces détecteurs présentent une grande stabilité et peu de « bruit » électronique.

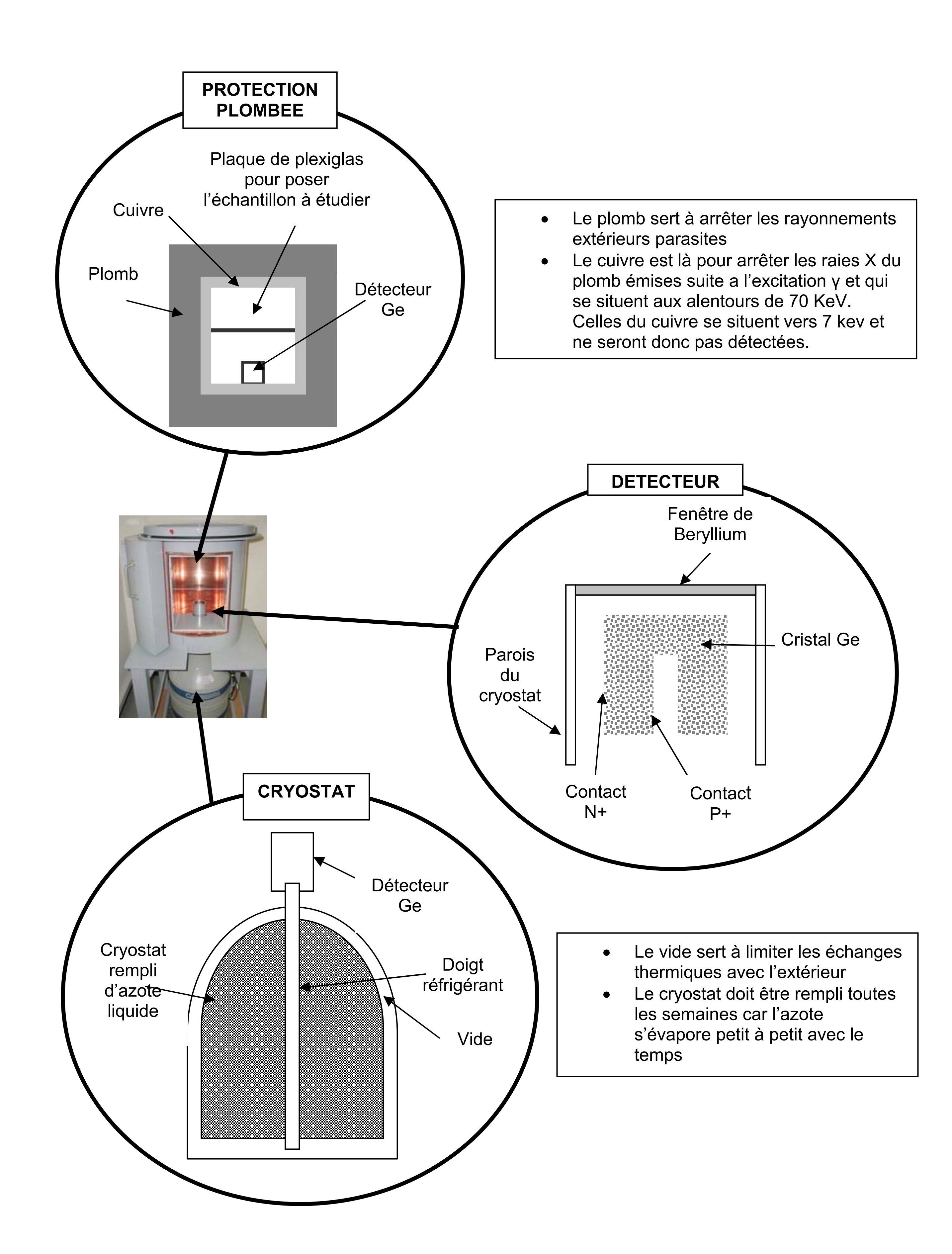


Figure 18: Description de détecteur Ge1

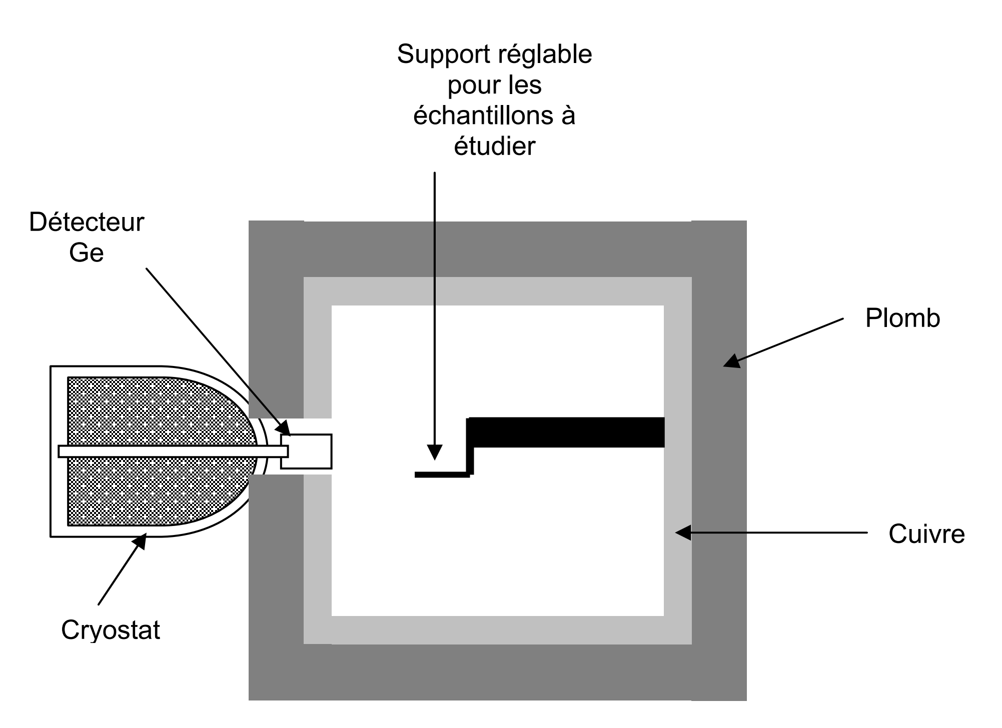


Figure 19: Description du détecteur Ge5

Ce détecteur a la particularité de posséder une grande cuve en plomb et cuivre, ce qui permet des spectrométries d'échantillons de grandes dimensions.

2.2. Contrôle qualité

Il se fait à l'aide d'une source de ^{232}Th à l'équilibre avec ses fils. On a choisi ce type de source car elle couvre une très large plage en énergie (10 keV à 3 MeV).
On place cette source pendant une demi heure devant le détecteur à une distance et une hauteur définies, afin d'avoir un bon taux de comptage.
Ce comptage sera répété, sur les deux détecteurs, hebdomadairement et strictement dans les mêmes conditions afin de suivre les éventuelles déviations du détecteur.
Un logiciel d'assurance qualité va traiter les données afin d'étudier les paramètres suivants : le centroïde, l'énergie, la largeur a mi-hauteur, le nombre de coups par seconde et l'efficacité.
L'étude se fera toujours sur les trois mêmes pics (209, 511 et 2614 keV).
On suivra aussi l'évolution de la température de la pièce car les appareils sont très sensibles à ces variations (le laboratoire est climatisé).
A deux sigmas de déviation, on fera une investigation, à trois on interviendra afin de remédier au problème. Ainsi, on pourra être amenés a faire une re-calibration en énergie, un rechauffement-refroidissement du détecteur afin d'y refaire le vide (amélioration de la résolution) ou une remise en service.

3. Analyse d'une spectrométrie

3.1 Logiciel de spectrométrie GENIE 2000.

GENIE 2000 possède différentes fonctionnalités. Nous allons en détailler les principales :

3.1.1 Soustraction du bruit de fond

Tous les mois (ou à la suite d'une déviation) une acquisition « à vide » est effectuée afin de former le spectre du bruit de fond ambiant. Ce spectre est constitué principalement par les rayonnements cosmiques et par les radioéléments des familles de l'uranium et du thorium.

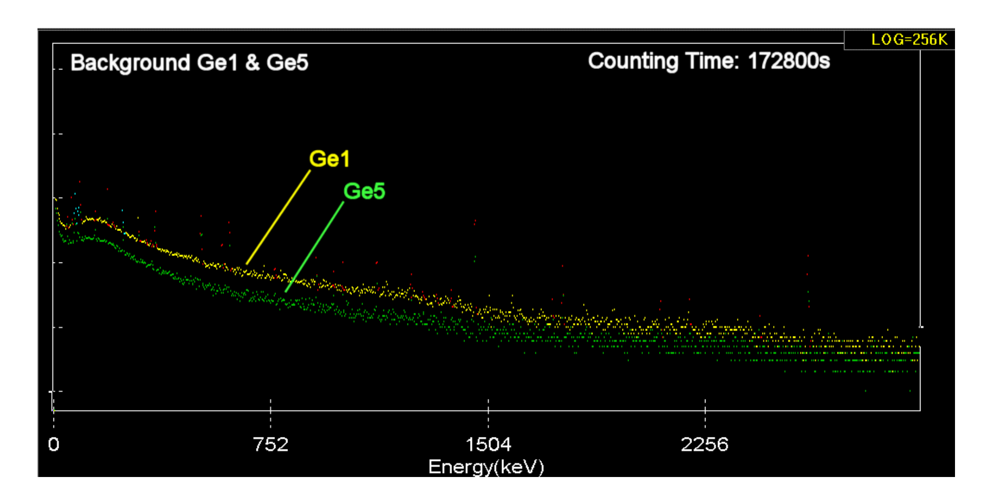


Figure 20: spectre d'acquisition du bruit de fond

A partir de celui-ci, GENIE 2000 soustrait automatiquement les pics de fond au spectre des échantillons à étudier pour ne garder que les informations qui nous intéressent, c'est-à-dire celles propres à l'échantillon.

3.1.2 Logiciel de modélisation Labsocs

Ce logiciel sert à modéliser, du mieux possible, la géométrie de la source étudiée afin tenir compte de l'efficacité géométrique de l'échantillon. Ainsi, en prenant en compte l'auto absorption ayant lieu au sein de l'échantillon, on pourra effectuer un étalonnage en efficacité plus précis. Le logiciel va donc s'appuyer sur des paramètres tels que la géométrie propre de l'échantillon (dimensions, épaisseur,…) mais aussi de la nature du matériau, sa densité, la distance source-détecteur, et du type de détecteur.
Dans notre cas, plusieurs types de modélisations sont possibles pour le même échantillon, ce qui peut donner lieu à de petites divergences d'activités entre les différentes combinaisons possibles.

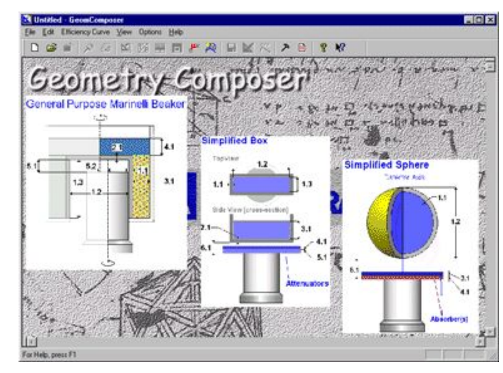


Figure 21: Logiciel de modélisation Labsocs

On a procédé, pour chaque échantillon, à différents essais de modélisation afin de retenir celle qui mène à l'activité la plus élevée. On préfèrera, dans le doute, surestimer l'activité des échantillons. La méthode et les essais de différentes géométries de modélisation sont expliqués en Annexe 1.

3.1.3 Correction du pic de référence

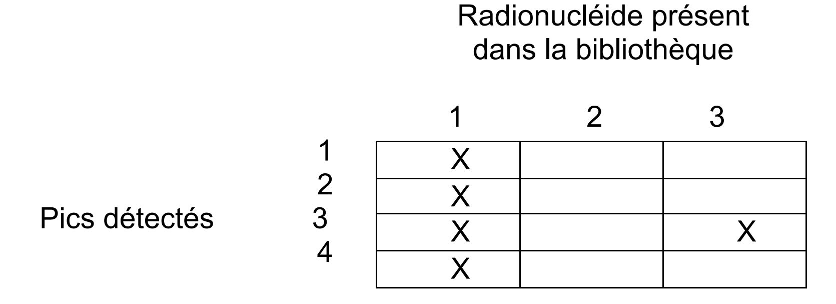
C'est en fait l'étalonnage en énergie. On utilise la position d'un pic de référence pour normaliser la position de tous les autres pics du spectre à étudier. Cette correction se fait automatiquement à l'aide d'une source fixe connue.

3.1.4 Correction de l'efficacité

Le logiciel mesure le nombre de coups détectés d'une source d'étalonnage et calcule, pour chaque pic (c'est-à-dire pour différentes énergies), le coefficient de correction en efficacité. Grâce à ces résultats, il procède à l'élaboration de la courbe d'étalonnage en efficacité.

3.1.5 Identification et quantification des radionucléides

On peut créer des bibliothèques de radionucléides où sont précisées leurs périodes ainsi que leurs différentes lignes d'émission et d'intensité associées. Pour qu'un radioélément soit reconnu comme identifié, il faut qu'il ait, au moins, une ligne d'émission en commun avec celui de la bibliothèque (matrice d'identification), que la période du probable radioélément soit cohérente avec le temps d'acquisition. Le logiciel calcule ensuite, pour chaque raie identifiée, un indice de confiance ainsi que son activité massique corrigée de la décroissance (temps d'acquisition long, calcul d'activité à une date différée,…)



Pics détectés \ Radionucléide présent dans la bibliothèque	1	2	3
1	X		
2	X		
3	X		X
4	X		

Figure 22: Matrice d'identification

Le radionucléide 1 possède quatre raies identifiées, le numéro 2, aucune et le 3, une raie.
Les radio-isotopes numéro 1 et 3 sont donc reconnus comme identifiés, le numéro 2 est rejeté par l'analyse.

3.1.6 Calcul de l'activité moyenne pondérée

Le calcul d'activité A (Bq.g^{-1}) d'un radioélément se fait à partir du calcul d'activité de chacun des pics d'émission du radioélément considéré A_P (Bq.g^{-1}).
Pour cela, GENIE 2000 va calculer mathématiquement l'aire située sous chacun des pics d'émission à l'aide du fit, c'est-à-dire une gaussienne qui épouse, le mieux possible, la forme du pic étudié. On arrive ainsi au nombre d'événements N (ou nombre de coups) présents dans un pic donné. C'est à partir de cette valeur que s'effectue le calcul de A_P .

$$A_P = \frac{N}{\Delta t \times I \times \varepsilon \times m} \qquad (1)$$

On divise le nombre de coups détectés N d'un pic, par le temps de mesure de l'échantillon Δt (en seconde), par l'intensité d'émission de la raie I , par la masse de l'échantillon m (en gramme) et par le rendement de la chaîne de détection ε (celui-ci tenant compte de l'efficacité intrinsèque du détecteur et de l'efficacité géométrique de l'échantillon). On détermine ainsi l'activité du pic considéré A_P .

Pour accéder à l'activité A du radioélément dans son ensemble, le logiciel va faire la moyenne des activités de tous les pics i détectés lui appartenant :

$$A = \frac{\sum_{i=1}^{i} \frac{A_{Pi}}{\sigma_{A_{Pi}}^{2}}}{\sum_{i=1}^{i} \frac{1}{\sigma_{A_{Pi}}^{2}}} \qquad (2)$$

A_{Pi} : Activité du i^{eme} pic.

σ : Déviation standard de A_{Pi} ($\sigma = \sqrt{N}$).

3.1.7 Calcul de MDA (Minimum Detectable Activity)

La MDA est l'activité minimum détectable (en Bq.g^{-1}), c'est-à-dire l'activité au dessous de laquelle un radioélément n'est pas détecté. Elle peut être calculée pour les radioéléments présents dans le spectre enregistré mais aussi pour tous les autres isotopes non détectes mais faisant partie de la bibliothèque utilisée.

Pour arriver à une valeur de MDA, on utilise deux autres valeurs : Le seuil de décision (SD) et la limite de détection (LD).
Le seuil de décision est celui au dessous duquel on estime qu'un signal N n'est pas significatif et la limite de détection correspond à la valeur du plus petit signal qui peut être quantifié de manière fiable. Ces deux grandeurs s'expriment en nombre de coups, et typiquement SD < LD.

Lors du procédé de décision, on est face à 2 risques:

- ✓ affirmer que le signal est significatif alors qu'il ne l'est pas (**risque α**).
- ✓ affirmer que le signal n'est pas significatif alors qu'il l'est (**risque β**).

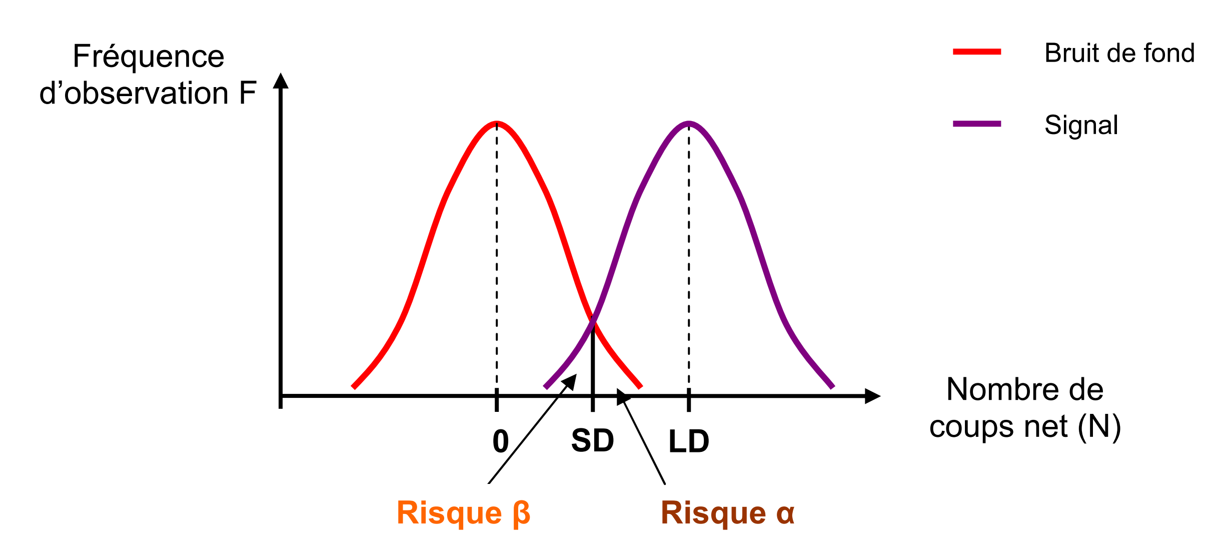


Figure 23: Illustration des concepts de seuil de décision (SD) et limite de détection (LD) (Le nombre de coups net signifie que le bruit de fond a été soustrait)

Le calcul du SD se fait en tenant compte du bruit de fond et d'une manière simplifiée :

$$SD \approx 2\sqrt{2N_{bdf}} \qquad (3)$$

A partir du SD, on calcul la LD :

$$LD = 2\ SD \qquad (4)$$

On va comparer les signaux à étudier à la LD :

- Le signal N est supérieur à la LD : on calculera normalement l'activité associé A à partir de N avec la formule (1)
- Le signal N est inférieur à la LD : on calculera la MDA à partir de la LD :

$$MDA = \frac{LD}{\varepsilon \times I \times \Delta t} \qquad (5)$$

3.2 Vérification manuelle de l'analyse

Le logiciel de spectrométrie GENIE2000 effectue une analyse automatique du spectre enregistré. Cependant, ce logiciel est plus adapté à l'étude d'échantillons en provenance de l'environnement avec un spectre comportant peu de pics c'est-à-dire peu de radio éléments.
En cas de doute sur la cohérence des résultats obtenus par l'analyse automatique, on peut effectuer une vérification de manière manuelle. Cependant cette pratique peut devenir très laborieuse face à des spectres comportant de nombreux pics.

En effet, cette vérification consiste, dans un premier temps, à contrôler que les activités calculées pour les différents pics d'un radioélément sont homogènes. Des différences peuvent être expliquées par certains phénomènes. L'activité d'un pic résulte, souvent, de la contribution de deux radioéléments possédant une raie en commun, c'est-à-dire de la même énergie, ou à plus ou moins 1 KeV.

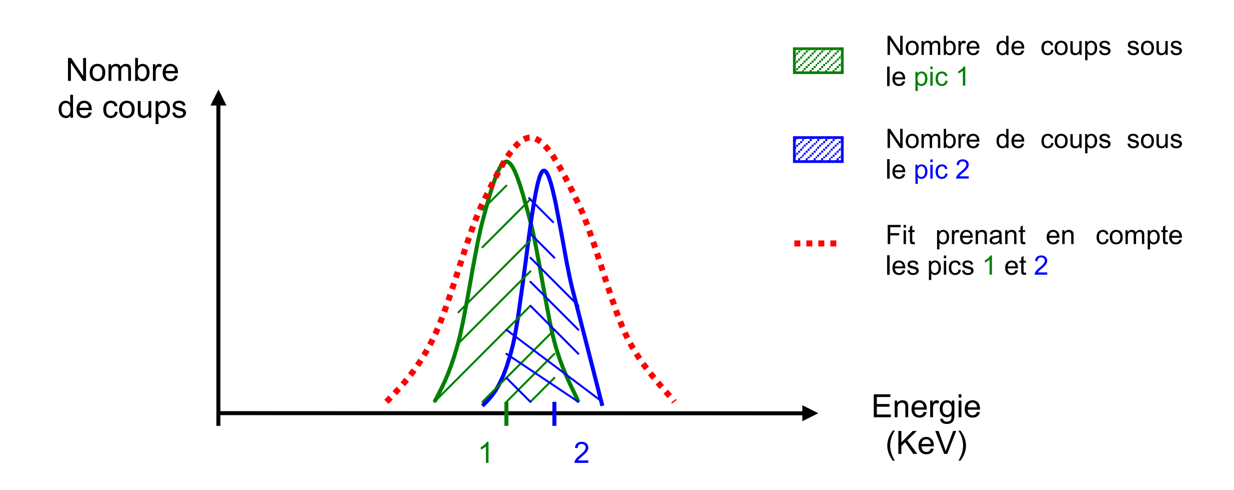


Figure 24: Explication de la contribution de deux raies d'émission à l'activité d'un seul pic

Si la résolution du détecteur est supérieure à 1 KeV, les deux pics ne seront pas différenciés, et le fit (qui sert à calculer mathématiquement l'aire contenue sous le pic, c'est-à-dire le nombre de coups) se fera comme si il y avait un seul « gros » pic. Le nombre de coups compris sous les pics 1 et 2 seront additionnés. Ainsi, pour le calcul d'activité de chacune des raies, le logiciel attribuera la totalité de la surface du fit, à la fois au pic 1 et 2.
Il en résultera une activité de la raie 1 supérieure aux autres raies du radio élément 1 et de même pour la raie 2.

La correction sera faite par GENIE2000 lors du calcul de l’activité moyenne pondérée.
Si l’inhomogénéité d’activité ne découle pas de ce phénomène, il faudra chercher une autre raison.
Pour cela on pourra vérifier que le fit du pic est correct et l’améliorer si besoin est.

Ensuite, dans le cas ou l’on ne retrouve pas la totalité des raies d’un radioélément dans le spectre, on vérifiera que ce sont bien celles ayant les plus fortes intensités d’émission qui sont détectées. Dans le cas contraire, cela cache peut-être le fait que ce radio élément n’est pas présent et que les raies qui lui ont été attribuées par GENIE2000, sont bel et bien présentes, mais appartenant à un autre radio élément.

Enfin, en déterminant la provenance des pics non identifiés, on peut mettre en évidence la présence d’un radioélément non répertorié dans la bibliothèque.

Ces vérifications manuelles aident ainsi à affiner le contenu de la bibliothèque des radioéléments, c'est-à-dire la liste des radio-isotopes et de leurs pics qui seront pris en compte par le logiciel pour l’analyse.

Nous verrons que dans le cas de nos échantillons, cette vérification manuelle sera obligatoire pour chacun des prélèvements analysés, ce qui va considérablement compliquer toute la partie spectrométrique de l’étude et demander un temps nettement supérieur a celui habituellement requis pour une analyse basique.

Résultats de l'étude

Suite aux analyses spectrométriques et aux simulations par le code de calcul FLUKA, nous sommes en possession d'une certaine quantité de résultats. Ceux-ci sont présentés en Annexe 4.

L'étude à été menée sur 3 cibles : 123 (CaO), 108 (Sn) et 81 (Nb). Les caractéristiques précises de ces cibles sont disponibles à l'Annexe 2.

On a cherché à obtenir des résultats spectrométriques les plus proches possibles de la réalité. En effet, il est très important pour notre étude d'avoir des résultats corrects et exploitables car ils constituent le point de comparaison avec les résultats de simulation et donc la base de toute notre méthodologie. Pour cela il a fallu effectuer une vérification manuelle de tous les résultats obtenus par analyse automatique. En effet, suite à cette vérification, les résultats concernant la composition isotopique de l'échantillon analysé peut varier de manière conséquente. Prenons pour exemple un échantillon de la cible 123.

Table 2: Comparaison de la même analyse spectrométrique (Fil de Tantale de la cible 123) sans et avec vérification manuelle.

Radio-isotopes détectés	analyse automatique		**Avec** vérification manuelle	
	Activité ($Bq.g^{-1}$)	Erreur (%)	Activité ($Bq.g^{-1}$)	Erreur (%)
^{60}Co	65.6	20.1	62.3	45.4
^{65}Zn	405	19		
^{102}Rh	52.6	53.1		
^{133}Ba	497	13.9	466	15.8
^{145}Pm			7100	27.5
^{145}Sm			7261.5	22.8
^{150}Eu	19.6	73.4		
^{172}Hf	33500	14.5	18500	11.8
^{172}Lu	33800	7	18683	7
^{173}Lu	43900	9.3	41200	9.4
^{174}Lu	6700	15.2	6580	59.7
^{178}Hf	153	11.2	155	11.3
^{179}Ta	243000	13.4	246000	13.1

On remarque que, suite à la vérification manuelle, des radio-isotopes ont disparus et d'autres sont apparus dans le listing de la composition de l'échantillon analysé.
C'est le cas des éléments ^{65}Zn, ^{102}Rh et ^{150}Eu qui ont été enlevés car ils ne pouvaient pas être présents dans l'échantillon. En effet, les raies détectées étaient peut-être incohérentes au niveau de leurs intensités d'émission, et appartenaient en même temps à un autre radioélément, ou alors, leur période de décroissance était peut être trop courte pour qu'ils soient encore présents dans l'échantillon au moment de la mesure.
Au contraire, le ^{145}Pm et le ^{145}Sm ont été ajoutés. Ils ont peut-être été reconnus par l'analyse suite au retrait des 3 autres radioéléments, ou ont peut-être été rajoutés dans la bibliothèque suite à leur découverte dans la liste des pics non identifiés.
On comprend que cette vérification manuelle, pourtant très laborieuse, est essentielle et qu'on ne peut s'y soustraire sous peine d'obtenir des résultats faussés. Ceci représente donc un obstacle de plus à la mise en place d'analyses spectrométriques systématiques de nos cibles expérimentales et démontre encore l'avantage de l'utilisation du code de calcul FLUKA.

Les résultats spectrométriques ont ensuite été confrontés aux résultats de simulation obtenus parallèlement. On a choisi de les présenter sous forme de rapport. Nous prendrons comme référence, les résultats spectrométriques car, étant donnés qu'ils sont de nature physique, ils représentent le point de comparaison. Ainsi, on pourra vérifier que les résultats de simulation se situent bien dans une fourchette d'un facteur 10 autour de la valeur spectrométrique mesurée, c'est-à-dire entre 0.1 et 10 (Facteur acceptable pour l'entreposage des déchets par PSI)

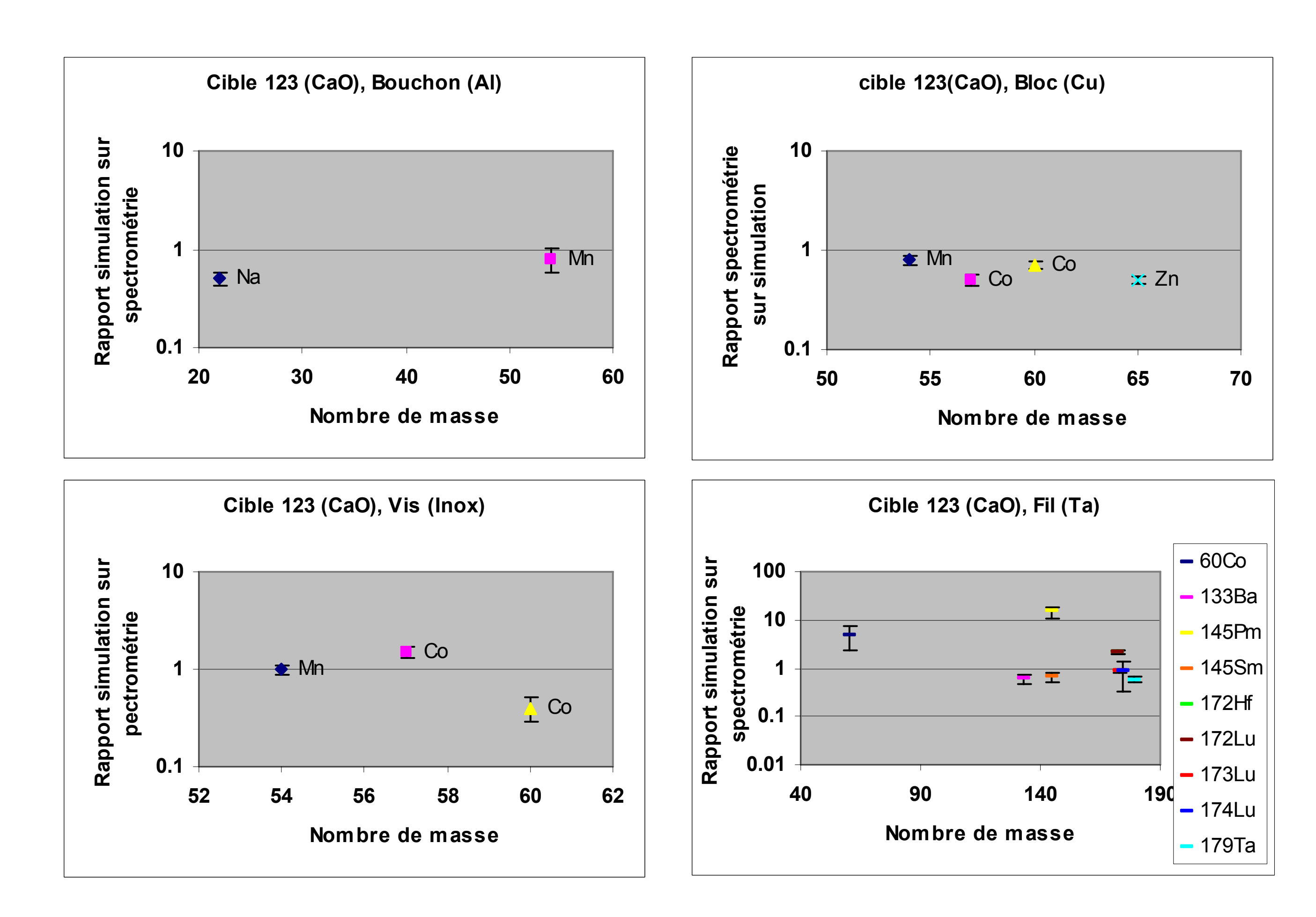


Figure 25 : Résultats obtenus pour la cible 123 (CaO)

COMMENTAIRES SUR LA CIBLE 123 (CaO)

On remarque que pour les trois premiers échantillons (Bouchon Al, Bloc Cu et Vis inox), les résultats se placent bien dans la fourchette définie par PSI. Cependant, pour ce qui est du fil de tantale, on remarque que le ^{145}Pm ne répond pas tout à fait aux critères. En effet la valeur d'activité est surestimée par la simulation. Il faudra tout d'abord vérifier l'analyse spectrométrique afin de s'assurer que les valeurs d'activités ont été calculées de manière correcte par le logiciel. Ensuite, on recherchera ce qui peut être la cause de cet écart.
Sur ce lot d'échantillons, on notera donc que la méthode par simulation à tendance à sous-estimer légèrement les valeurs d'activité mais reste très cohérente.

Seuls les isotopes reconnus en même temps par la spectrométrie et la simulation figurent sur ces graphiques. En effet, de nombreux autres isotopes ont été trouvés par la simulation, et ceci du fait que le code de calcul liste aussi les émetteurs α et β purs qui sont, bien sûr, indécelables avec un détecteur γ. Concernant les isotopes détectés par l'analyse spectrométrique, certains ne sont pas retrouvés par simulation. Ceci s'explique par le fait que les échantillons sont très souvent contaminés par les radio-isotopes crées par les structures voisines. Cependant, cette contamination n'est pas calculable par simulation. On va donc chercher à enlever cette contamination en traitant les autres échantillons à analyser par un décontaminant.

Ainsi, les échantillons prélevés sur les cibles 108 (Sn) et 81 (Nb) ont été, cette fois-ci, immergés pendant une nuit dans un décontaminant (GIGAPUR 05) puis frottés afin de s'affranchir, lors de la spectrométrie, des éléments contaminants.

Pour exemple, voici les résultats spectrométriques de deux bouchons aluminium de deux cibles différentes mais de même composition et provenant des mêmes emplacements.

Isotopes	**Sans** traitement décontaminant	**Avec** traitement décontamination
^{22}Na	507	484
^{54}Mn	12.7	10.7
^{57}Co	2.14	
^{60}Co	37.9	18.7
^{65}Zn		7.67
^{108}Ag	0.53	
^{109}Cd	27.4	
^{110}Ag	1.21	
^{125}Sb	57.5	
^{133}Ba	10.1	
^{145}Pm	13.7	
^{145}Sm	13.5	
^{173}Lu	11.5	
^{174}Lu	12.1	16

Figure 26 : Comparaison du contenu isotopique de deux échantillons, l'un analysé directement après prélèvement et l'autre ayant subi une décontamination.

On remarque que les échantillons traités par bain décontaminant présentent beaucoup moins de radioéléments. Cette action est donc efficace et elle présente les avantages de réduire les risques de dispersion de la contamination labile en la piégeant dans un bain et mène à une analyse spectrométrique plus simple car la vérification manuelle est facilitée.
Cependant, on remarquera la persistance du ^{174}Lu. Il existe donc encore, même après ce procédé, une contamination fixée à laquelle on ne peut se soustraire et que l'on retrouve sur certaines pièces.
Il faudra donc prendre en compte ce problème en essayant de quantifier la contamination fixée sur les structures et pouvoir la « rajouter » aux résultats obtenus par simulation afin de la prendre en compte lors de la mise en place du procédé d'évacuation.

Nous allons nous intéresser maintenant aux écrans accolés aux parois internes de la casserole. Ceux-ci sont des plus sujets à la contamination car ils se situent à proximité du volume cible.
Les écrans de la casserole sont, en fait, cinq couches d'écran en inox qui tapissent concentriquement l'intérieur de la casserole. Leur rôle est de protéger celle-ci contre la chaleur émise par le container et le volume cible lors de l'irradiation. Ces écrans sont disposés comme suit :

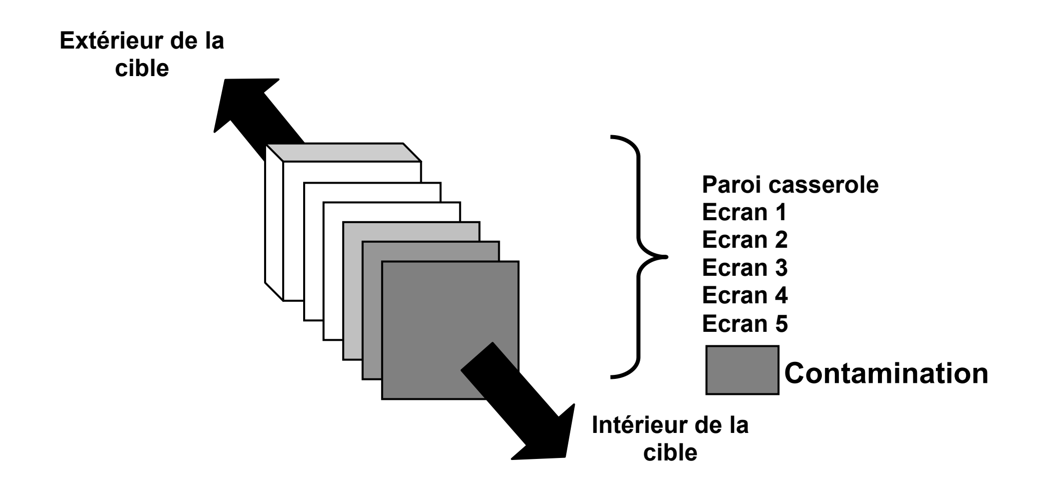


Figure 27: Disposition des écrans inox de protection de la casserole

On a prélevé, puis mesuré, par spectrométrie, des fragments des écrans 5, 4 et 3 de la cible 108 (Sn) en position amont (c'est-à-dire le bord de la casserole avec lequel les protons vont entrer en contact en premier) et avale :

Table 3: Résultats spectrométriques d'échantillons des écrans 5, 4 et 3 prélevés en position amont de la casserole.

Isotopes	Activité de l'écran 5 (Bq.g-1)	Activité de l'écran 4 (Bq.g-1)	Activité de l'écran 3 (Bq.g-1)
^{22}Na	418	11.7	10.1
^{44}Sc	5.11	5.59	10.02
^{44}Ti	7.09	5.77	5.91
^{54}Mn	686	783	686
^{57}Co	127	118	133
^{60}Co	944	867	910
^{108}Ag	170	Absence de contamination	
^{110}Ag	28.2		
^{125}Sb	379		
^{133}Ba	19.8		
^{143}Pm	29.3		
^{145}Pm	29.6		
^{172}Hf	46.7		
^{172}Lu	50.7		
^{173}Lu	57.3		

Table 4: Résultats spectrométriques d'échantillons des écrans 5, 4 et 3 prélevés en position <u>avale</u> de la casserole.

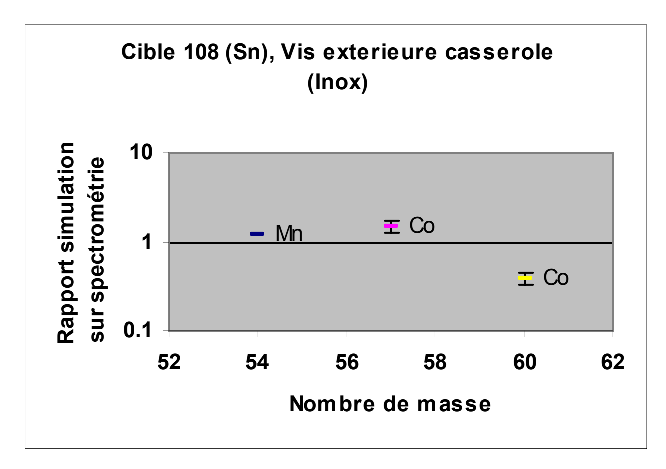
Isotopes	Activité de l'écran 5 (Bq.g-1)	Activité de l'écran 4 (Bq.g-1)	Activité de l'écran 3 (Bq.g-1)
^{22}Na	830	770	851
^{42}K	46.4	47.4	45.1
^{44}Sc	336	344	370
^{44}Ti	19300	357	372
^{54}Mn	1880	1790	2050
^{57}Co	312	287	257
^{60}Co	856	900	861
^{108}Ag	545	1.47	
^{109}Cd	290		
^{110}Ag	85.9		
^{125}Sb	521		
^{133}Ba	12.4	**Absence de contamination**	
^{145}Pm	53.4		
^{172}Hf	34.3		
^{172}Lu	31.2		
^{173}Lu	47.5		

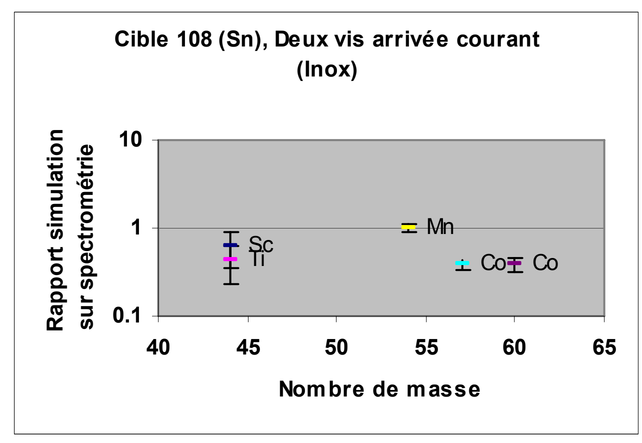
On remarque que l'écran 5 présente une contamination fixée (c'est-à-dire résistante à la décontamination préalable au GIGAPUR 05), tout comme le bouchon en aluminium étudié auparavant.

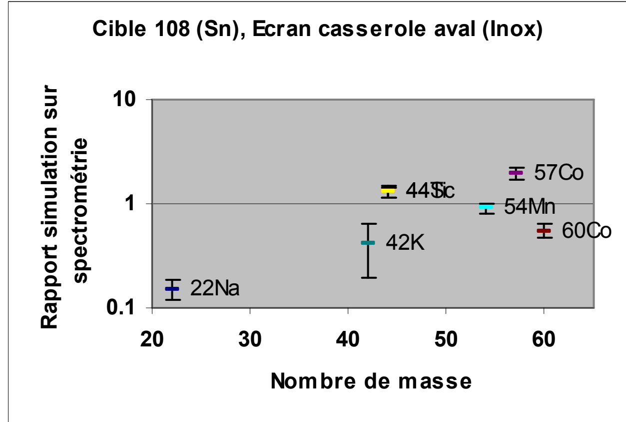
On note aussi que, de manière logique, celle-ci disparaît des écrans 4 et 3. En effet, protégés de la contamination par l'écran 5, les suivants ne présentent que les radioéléments dus à leur propre activation.

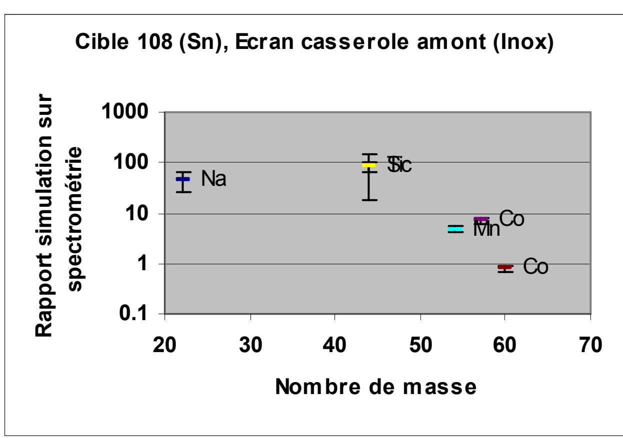
On cherchera donc, par la suite, à ne prendre pour échantillon, que les écrans situés au-dessous de l'écran 5 et au mieux l'écran 1, afin de s'affranchir de la contamination fixée.
On a tout de même remarqué, que sur les échantillons amonts et avals de la cible 81, une contamination fixée persiste, et ce, même en ayant prélevé l'écran le plus près possible de la parois de la casserole.
Cependant, même si cette précaution ne nous permet pas de nous affranchir totalement de la contamination fixée, elle permet tout du moins de la réduire de manière importante.
On notera aussi que les activités mesurées en aval sont bien supérieures à celles mesurées en amont. Cela peut s'expliquer par la direction des protons incidents qui vont créer des particules ayant le même sens d'avancée et qui auront tendance à aller interagir avec la paroi avale de la casserole.

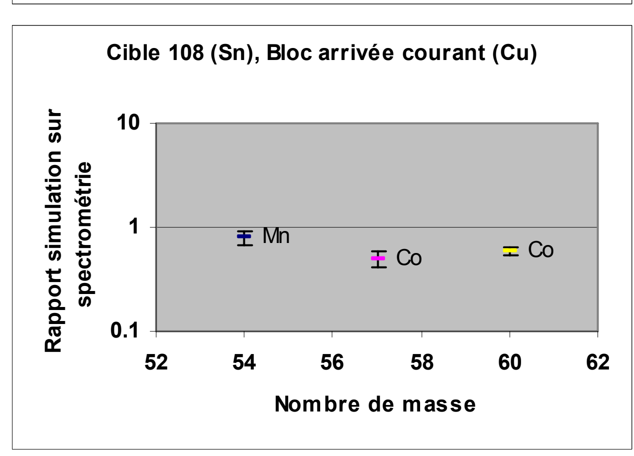
Voyons maintenant les résultats spectrométriques des cibles 108 (Sn) et 81 (Nb) comparés aux résultats de simulation.

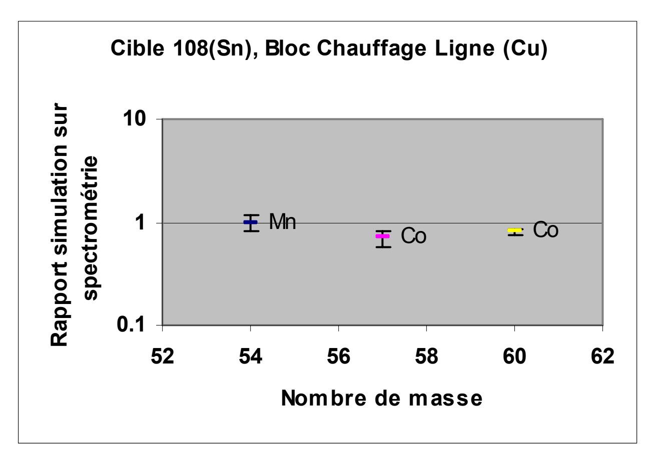


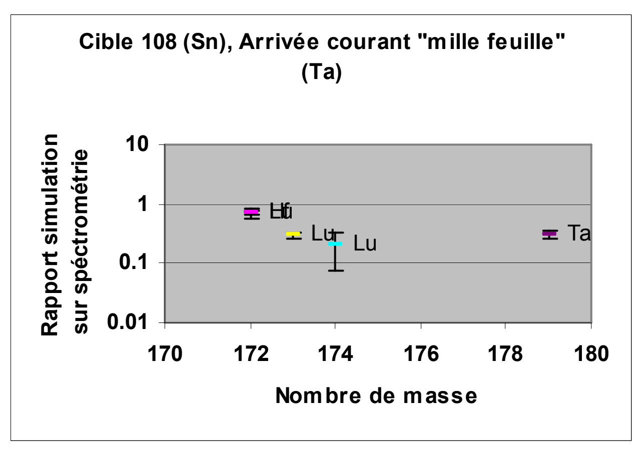


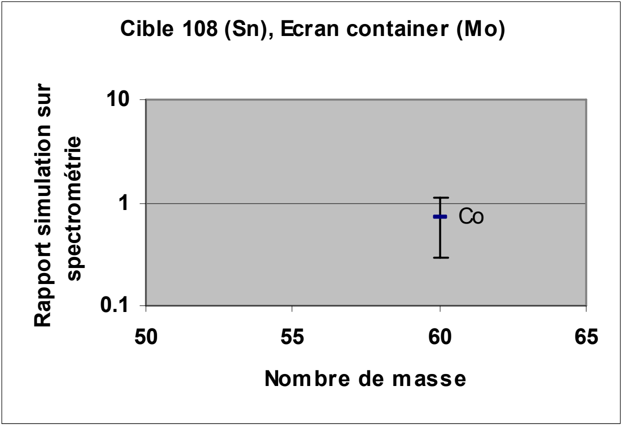


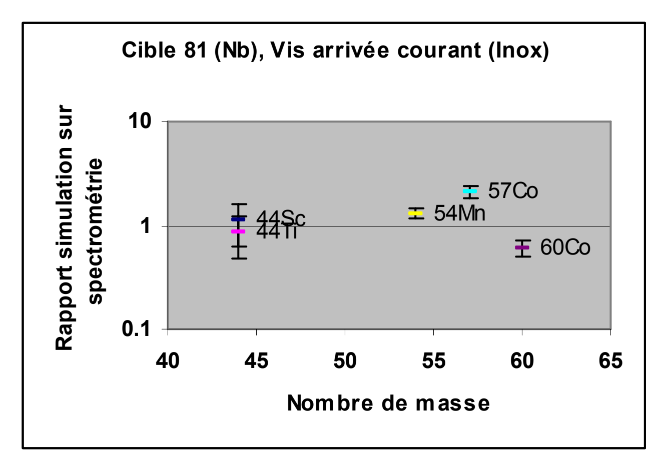


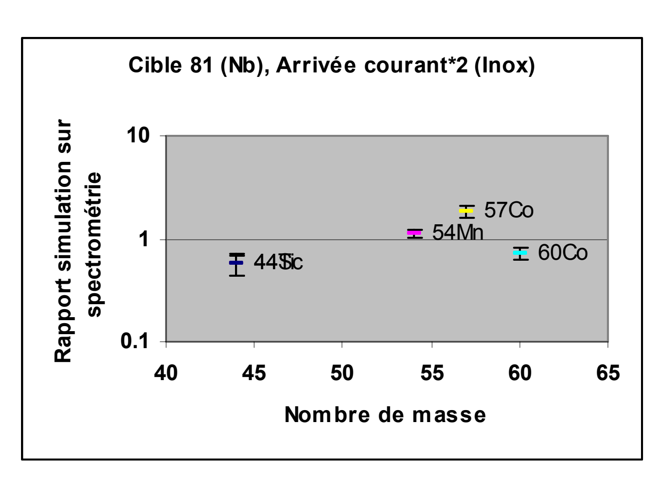


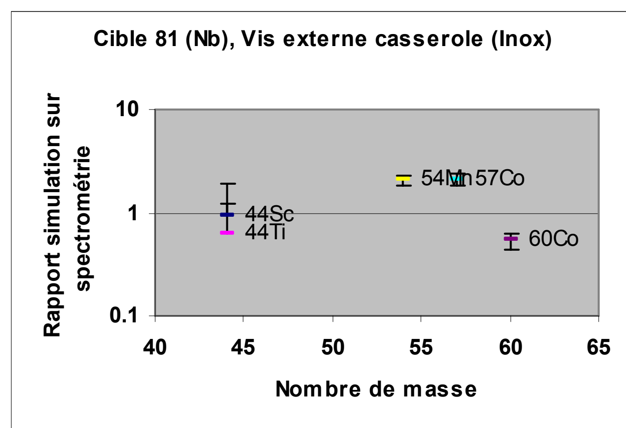


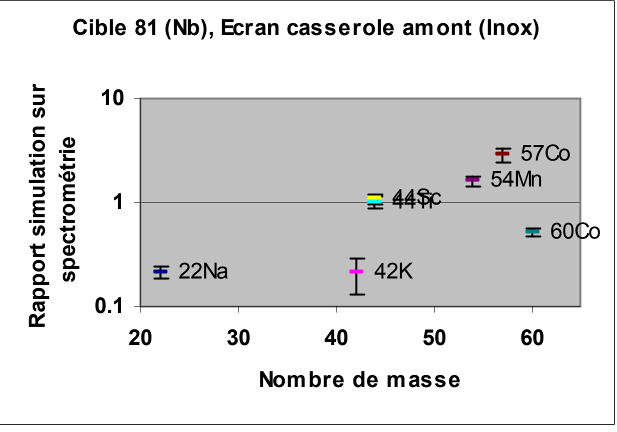


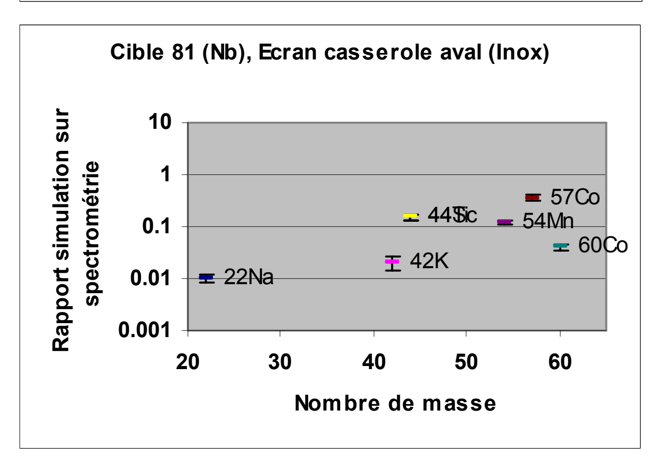


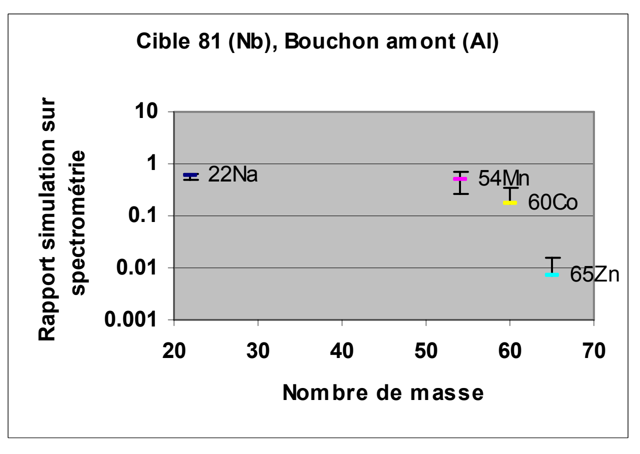

Cible 81 (Nb), Vis arrivée courant (Inox)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
44Sc
44Ti
54Mn
57Co
60Co

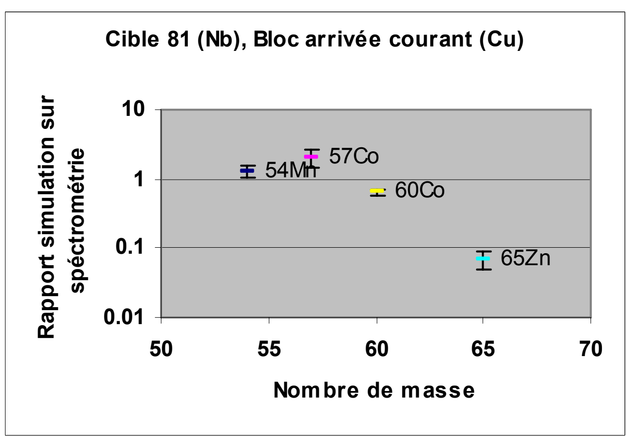

Cible 81 (Nb), Arrivée courant*2 (Inox)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
44Sc
54Mn
57Co
60Co

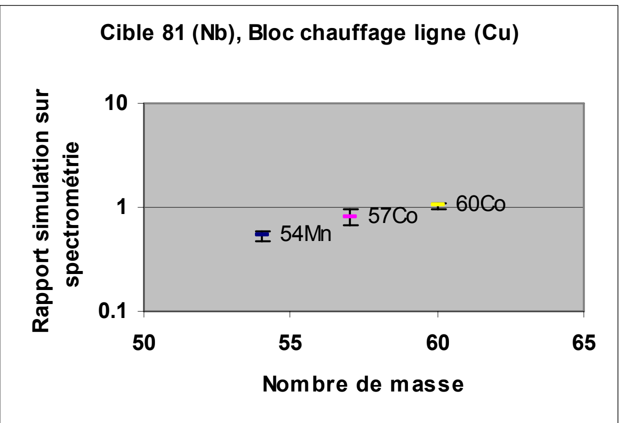

Cible 81 (Nb), Vis externe casserole (Inox)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
44Sc
44Ti
54Mn
57Co
60Co


Cible 81 (Nb), Ecran casserole amont (Inox)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
22Na
42K
44Sc
44Ti
54Mn
57Co
60Co


Cible 81 (Nb), Ecran casserole aval (Inox)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
22Na
42K
44Sc
54Mn
57Co
60Co


Cible 81 (Nb), Bouchon amont (Al)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
22Na
54Mn
60Co
65Zn


Cible 81 (Nb), Bloc arrivée courant (Cu)
Rapport simulation sur spéctrométrie
Nombre de masse
54Mn
57Co
60Co
65Zn


Cible 81 (Nb), Bloc chauffage ligne (Cu)
Rapport simulation sur spectrométrie
Nombre de masse
54Mn
57Co
60Co

COMMENTAIRES SUR LA CIBLE 108 (Sn) et 81(Nb)

Après étude des résultats, on constate quelques divergences au niveau de certains échantillons, malgré une bonne cohérence générale des résultats. Celles-ci concernent plutôt les éléments légers dans tous types de matériaux (écrans casserole en inox, bouchon en aluminium, bloc en cuivre).
Les problèmes de surestimation des résultats par FLUKA peuvent être résolus en vérifiant bien que l'activité mesurée par spectrométrie est juste. Si c'est le cas, il faudra rechercher une éventuelle erreur dans la simulation. Si tout est normal, on peut finalement expliquer cet écart par l'incertitude que l'on a sur la composition des matériaux utilisés dans les cibles.
Les sous-estimations, elles, peuvent s'expliquer par la surestimation que l'on a faite sur les activités avec les géométries de modélisation de Labsocs.
De plus, il reste la possibilité que tous les modèles nucléaires employés dans FLUKA ne décrivent pas la réalité dans tous les cas imaginables.
Concernant les erreurs associées aux rapports présentés dans les graphiques, elles résultent, d'une part, des erreurs spectrométriques et d'autre part de la simulation.
Les erreurs spectrométriques importantes concernent des radioéléments dont l'activité est proche de la MDA. Dans certains cas, l'activité calculée est même inférieure à celle-ci. Ceci est possible en signifiant manuellement un radioélément lorsque nous sommes sûr de sa présence. C'est en effet le cas pour les éléments de filiation comme le ^{44}Sc provenant du ^{44}Ti. La présence du premier va de paire avec celle du deuxième car au stade de décroissance de nos cibles, ces deux radio-isotopes sont à l'équilibre.
Les erreurs importantes de certains résultats de simulation concernent les radioéléments de section efficaces de production faibles. Ces incertitudes proviennent du petit volume des échantillons simulés et d'un temps de calcul pas assez long.

On remarque que, de manière générale, les résultats sont cohérents entre eux et leur rapport se situe bien entre 0.1 et 10.

Validations complémentaires

Nous avons menés, parallèlement à notre étude, deux tests afin de montrer la cohérence des résultats obtenus avec le code de calcul FLUKA. Ainsi, on a cherché à calculer le débit d'équivalent de dose aux alentours d'une cible à partir de sa modélisation. On a aussi simulé une géométrie permettant de calculer les sections efficaces de création de radio isotopes pour certains types de matériaux sous irradiation de proton. L'ensemble de ces résultats a été confronté aux mêmes résultats physiques.

1. Comparaison par mesure de débit d'équivalent de dose

Cette comparaison va être un paramètre d'analyse de plus entre les résultats obtenus par FLUKA et ceux mesurés. Ceci permettra de valider la méthode avec encore plus de certitudes. De plus, afin d'assurer un suivi de la fiabilité de la méthode de simulation dans le temps, cette disposition pourra être mise en place de manière répétée sous la forme d'un contrôle systématique au moment de l'évacuation de chaque cible.

1.1. Mesure

Nous avons mesuré, avant le prélèvement d'échantillons, le débit de dose à 10 cm de la cible 81 (Nb), en différents points. Nous avons parallèlement modélisé cette cible dans son ensemble à l'aide de FLUKA et simulé le débit de dose aux mêmes emplacements.

Les mesures ont été faites à l'aide d'un radiamétre AD6.
Cet appareil est un tube Geiger Müller dont la gamme d'énergie se situe entre 60 KeV et 1.3 MeV. Il permet de mesurer des débits d'équivalent de dose dans une fourchette de 0.5 $\mu Sv.h^{-1}$ à 10 $mSv.h^{-1}$.
Ces mesures concernent la cible 81 (Nb).

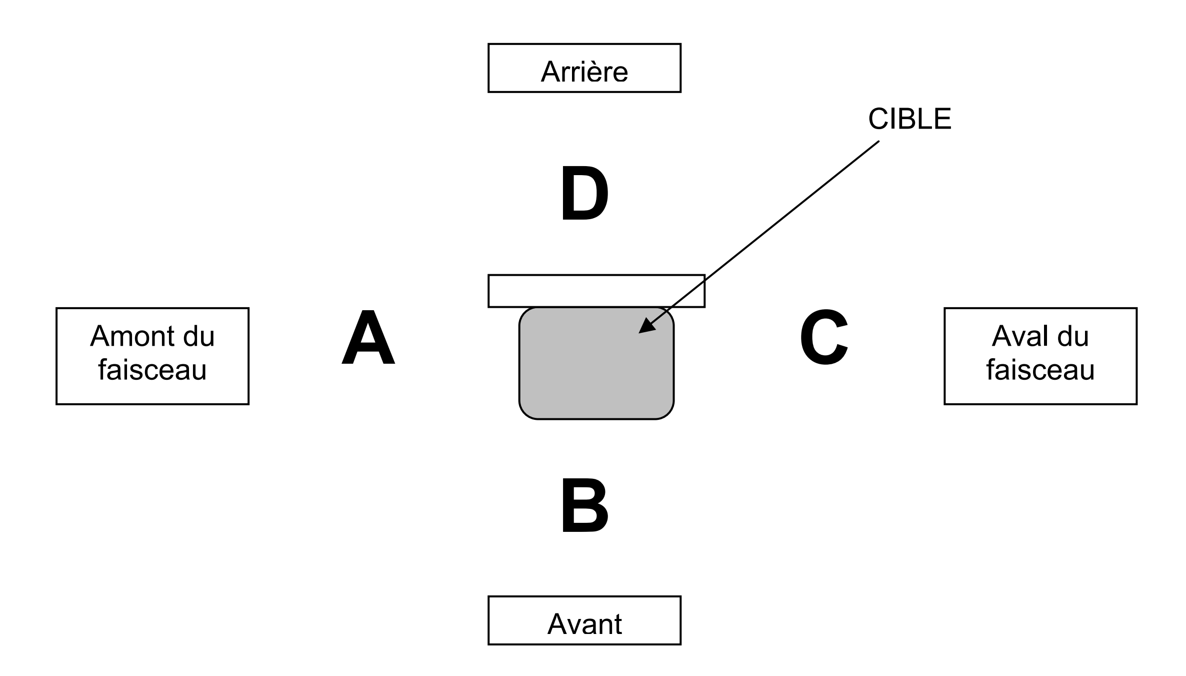


Figure 28: Vue de dessus d'une cible avec définition des points de mesure du débit d'équivalent de dose

1.2. Simulation

Parallèlement, le calcul du débit de dose s'effectue en trois phases :

- On simule tout d'abord l'activation de la cible suite à l'irradiation par le faisceau de proton (Utilisation de la même modélisation que pour la caractérisation radiologique).
- Calcul de la décroissance jusqu'à la date de la mesure
- Simulation de l'émission gamma pour pouvoir ensuite calculer le débit d'équivalent de dose autour de la cible. On peut, à partir de ce moment là, accéder à la valeur du débit de dose aux points voulus (c'est-à-dire, dans notre cas, aux points A, B, C et D).

1.3 Résultats

Table 5: Comparaison des résultats de débit d'équivalent de dose obtenus par simulation et par mesure à 10 cm de la cible 81 (Nb).

	Cible 81 (Nb)		
	Simulation ($\mu Sv.h^{-1}$)	Mesure ($\mu Sv.h^{-1}$)	Rapport
A	155	140	1.1
B	149	150	1
C	137	150	0.9
D	36	40	0.9

On remarque que les résultats de simulation correspondent très bien aux résultats de mesure.
Cependant, on prendra soin de vérifier, de nouveau, cette cohérence sur d'autres cibles avant que cette méthode ne soit appliquée en routine pour le contrôle systématique de la validité de FLUKA.

2. Comparaison des sections efficaces

Grâce au programme FLUKA, on peut calculer des valeurs de section efficace de production de radioéléments par des protons selon leur énergie sur différents matériaux.
Nous allons donc simuler, avec FLUKA, une géométrie d'irradiation simple pour effectuer ces calculs.
Cet essai a pour but de démontrer la crédibilité générale des résultats apportés par FLUKA et ainsi constituer un point d'appui supplémentaire dans la validation de la méthode par code de calcul.
Nous prendrons comme base de comparaison les résultats de mesure de section efficace obtenus expérimentalement par une équipe de l'ITEP (Institute for Theoretical and Experimental Physics) [3]

2.1 Géométrie d'irradiation

Le choix de la géométrie d'irradiation s'est basé sur celle mise en œuvre par l'équipe de l'ITEP pour la mesure physique des sections efficaces. Cette géométrie est facilement reproductible par modélisation étant donné qu'elle est très simple.

On prendra comme géométrie d'irradiation un disque de 3 millimètre d'épaisseur, soumis à un faisceau de proton de 1.4 GeV.
Le calcul des sections efficaces se fera dans une tranche de 1 millimètre d'épaisseur placée au centre du disque. On a choisi une cible de faible épaisseur pour avoir peu ou pas de neutrons générés par les interactions proton matière. Si toute fois il y en a, ils ont un risque très faible d'interagir avec la cible. Ainsi, on est sûr d'être face à une production de radio-isotopes entièrement due aux protons incidents.
On fera varier le type de matériau du cylindre en fonction des résultats disponibles dans l'étude mais aussi des matériaux utilisés dans les cibles ISOLDE que nous pourrons être amenés à modéliser. On a donc simulé du cuivre, du fer, du nickel, du niobium et du plomb.

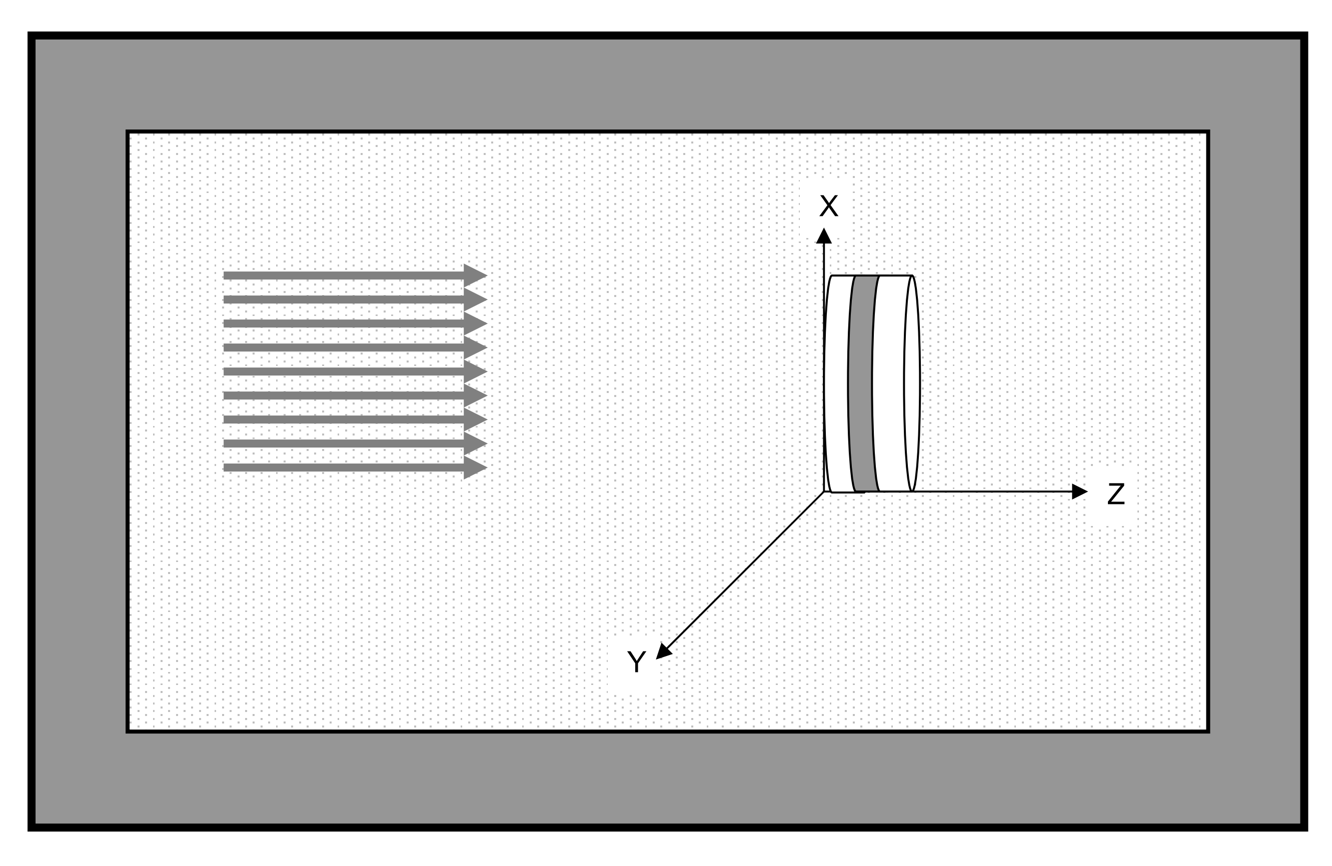


Figure 29: Géométrie d'irradiation simulée pour le calcul des sections efficaces de production de radio-isotopes

2.2 Mise en oeuvre

On crée un fichier « input » dans lequel on va décrire la géométrie d'irradiation avec les différents matériaux en jeu, le temps d'irradiation et l'énergie des protons. On précise dans ce fichier, le type de résultat voulu et pour quel volume.
Après un certain temps de calcul, le code nous délivre un fichier « output » dans lequel se trouvent les résultats.
FLUKA est capable de calculer $N*$, c'est-à-dire le nombre d'atomes d'un isotope radioactif crée par irradiation. Or on sait que :

$$N* = N\sigma_i\Phi \qquad (6)$$

Où :
N est le nombre d'atomes du volume cible.
σ_i la section efficace de production d'un radio-isotope i que l'on veut déterminer.
Φ la fluence des protons incidents.

N est donné par : $$N = \frac{S \times e \times \rho}{A} \times N_A \qquad (7)$$

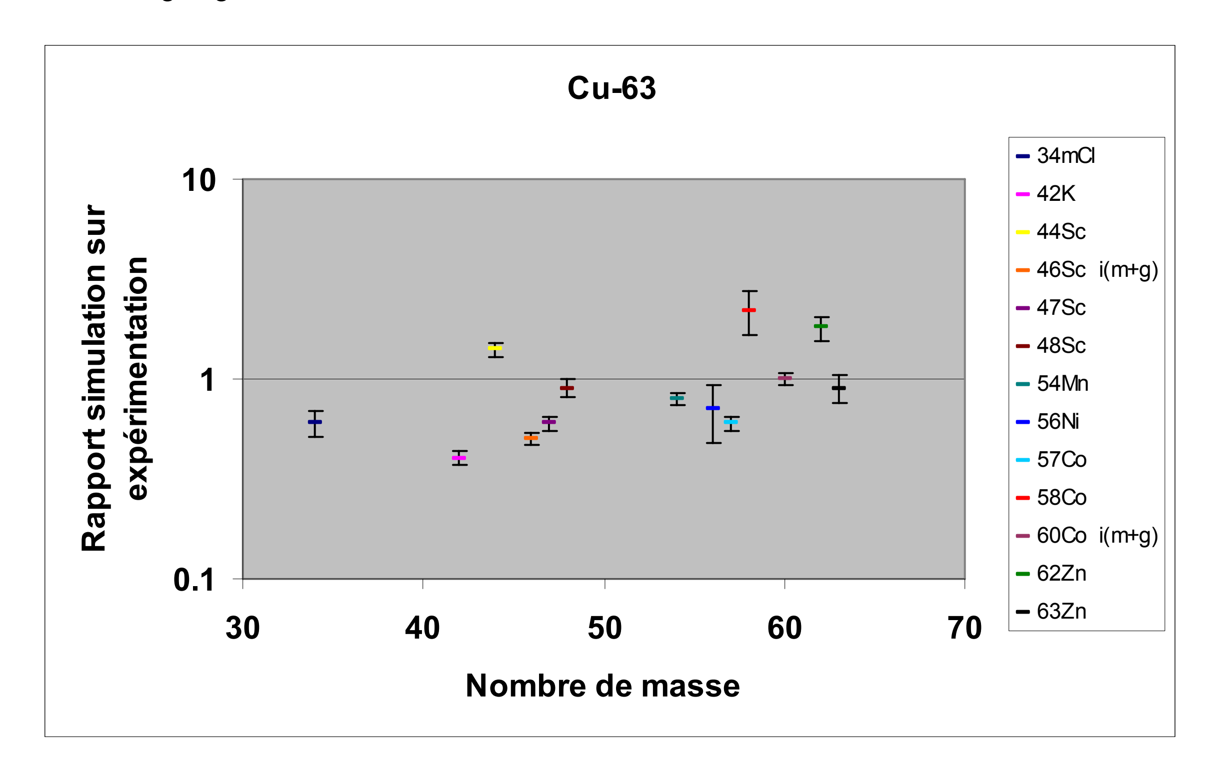
Et Φ est donné par : $$\Phi = \frac{1}{S} \qquad (8)$$

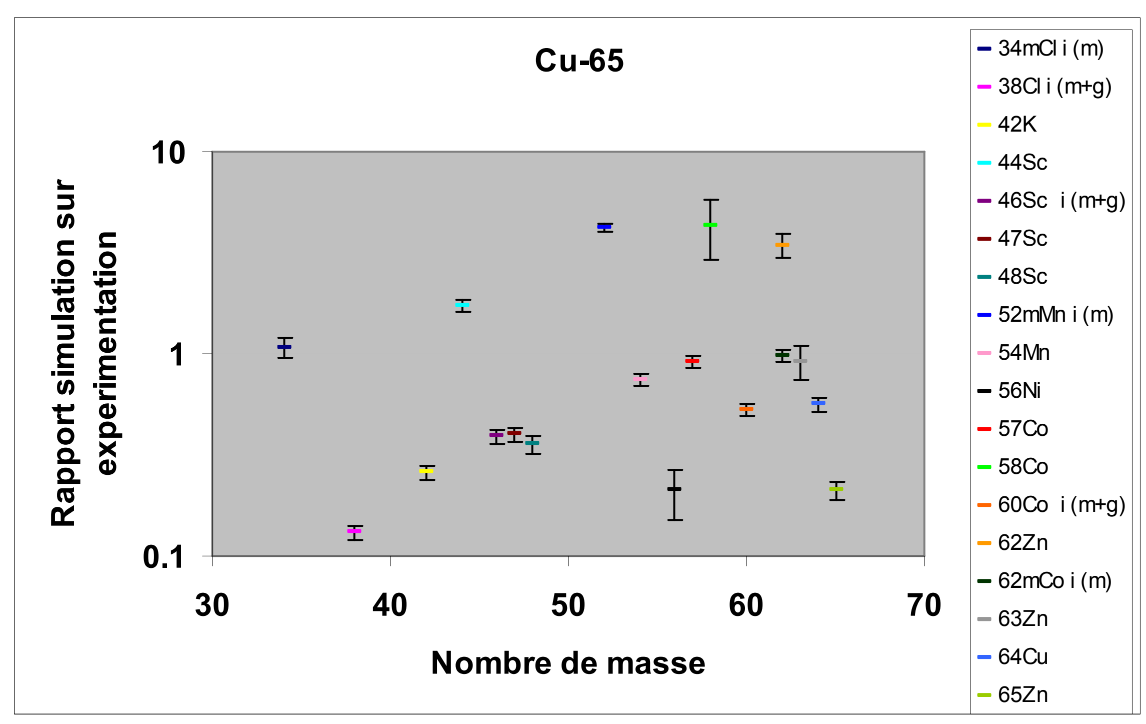
Où :
N est le nombre d'atomes du volume cible.
S la surface de la cible à irradier en cm^2
e l'épaisseur de la cible en cm
ρ la masse volumique du matériau de la cible en $g.cm^{-3}$
A le nombre de masse du matériau de la cible en $g.mol^{-1}$
N_A le nombre d'Avogadro en mol^{-1}

La condition pour que cette méthode soit valable est que le faisceau de proton doit être de la taille de la cible pour pouvoir déterminer Φ à partir de S. On prendra donc soin de remplir cette condition lors de la simulation.

2.2 Résultats

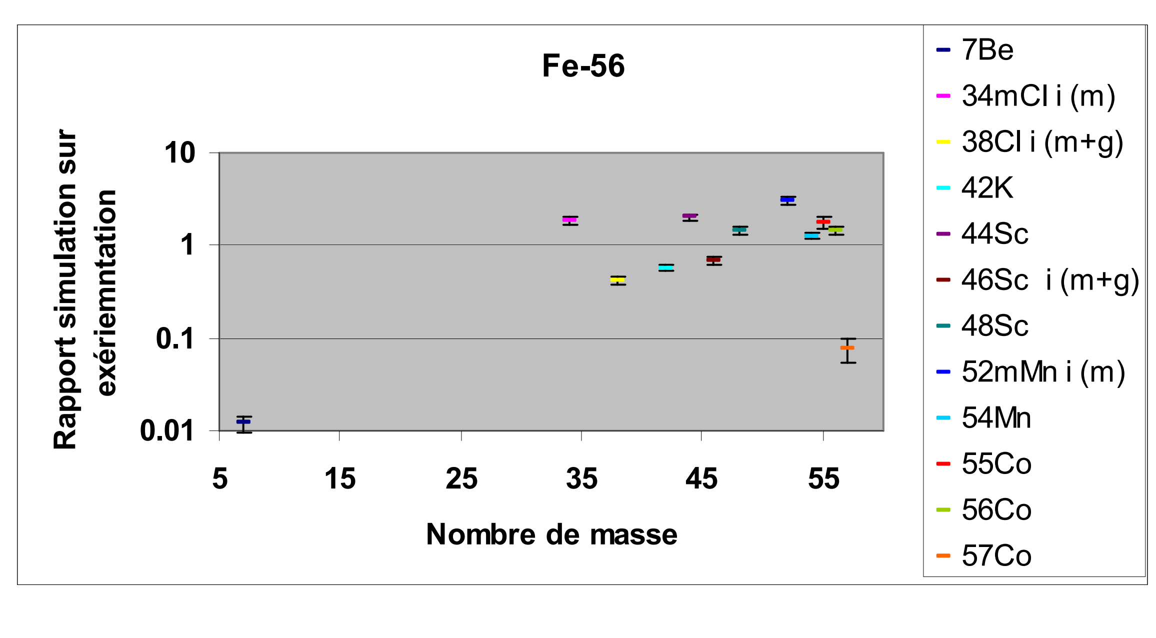
Le ^{63}Cu et le ^{65}Cu sont utilisés dans la composition des échantillons en cuivre tels que les blocs d'arrivée courant et chauffage ligne.

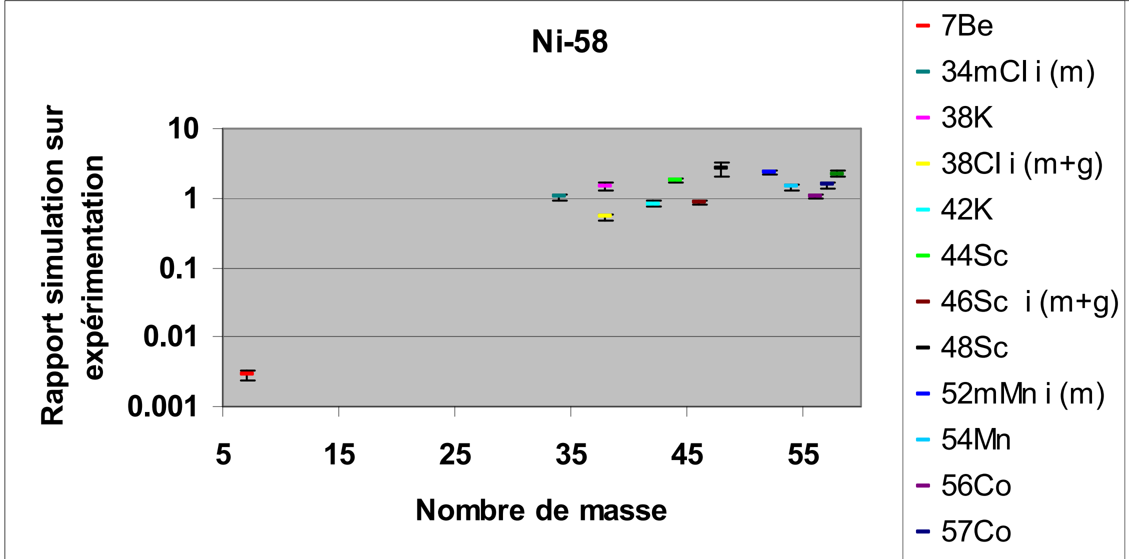




On remarque que toutes les valeurs calculées par FLUKA correspondent aux valeurs expérimentales dans la fourchette d'un facteur 10.

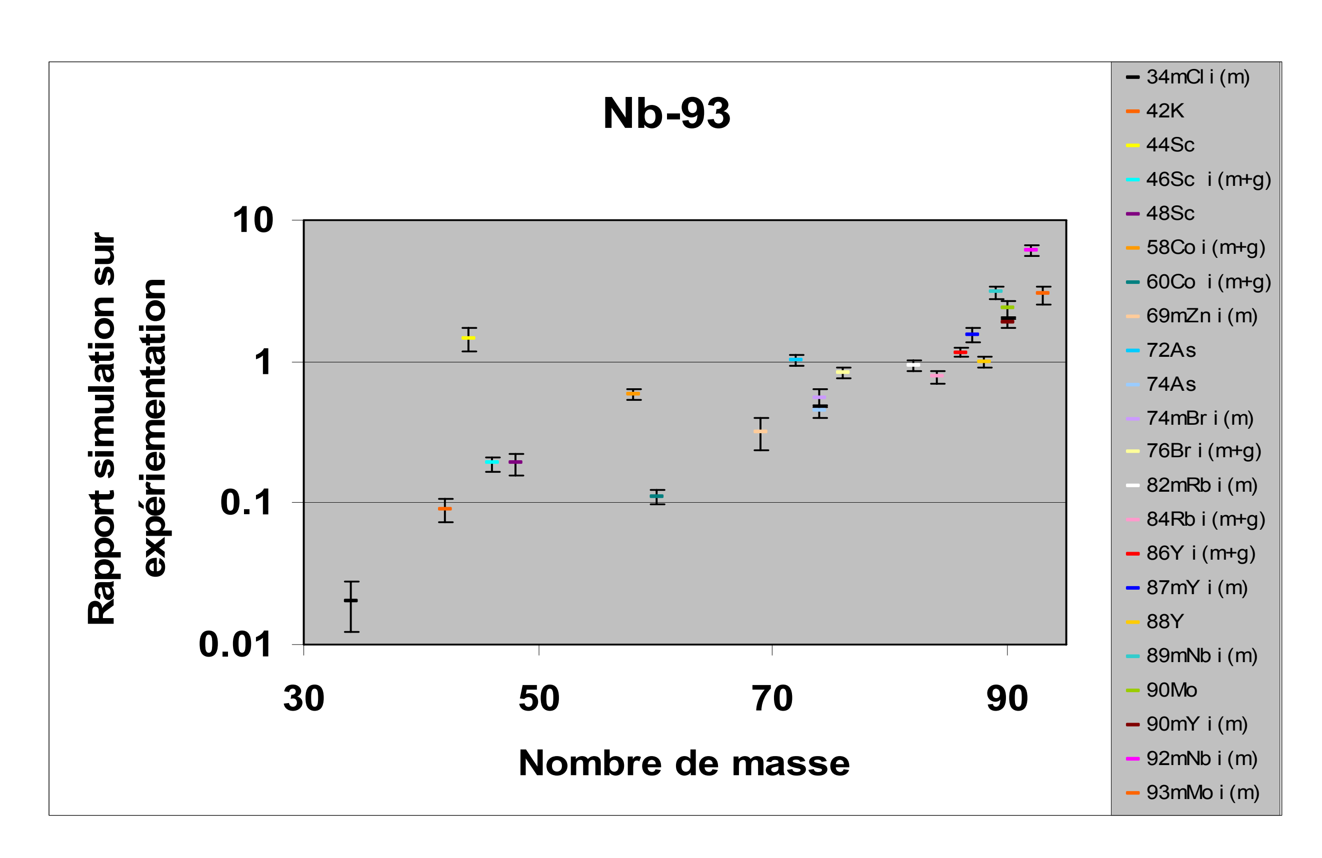
Le ^{56}Fe et le ^{58}Ni sont utilisés dans la composition de l'inox, c'est à dire des vis et des écrans thermiques tapissant l'intérieur de la casserole.





Il y a une bonne correspondance entre les valeurs expérimentales et obtenues par le code de calcul. On remarque juste une incohérence concernant le ^{7}Be.

Le ^{93}Nb est utilisé dans la composition du matériau cible utilisé pour la cible 81.



Toutes les données sont cohérentes avec les valeurs obtenues expérimentalement.

2.3 Conclusion

Les résultats sont en majorité cohérents avec les valeurs expérimentales. On peut donc en conclure que la méthode marche bien avec les éléments lourds, cependant, elle ne semble pas adaptée pour les éléments légers.
Ces deux essais (calcul de débit de dose et calcul de section efficace) corroborent les résultats concluants de l'étude menée au CERN en juin dernier, au sein de l'installation CERF (CERN-EU high-energy Reference Field) concernant l'évaluation du code de calcul FLUKA. Les résultats ont été obtenus par irradiation contrôlée de différents matériaux. [4]

Procédure d'évacuation à terme

Le but du travail qui a été exposé est d'aider à la mise en place d'une méthode d'élimination des cibles irradiées au sein de l'installation expérimentale ISOLDE.
Suite à notre étude, divers points ont pu être mis en évidence, ce qui nous permet maintenant de proposer une ébauche de procédé.

Celui-ci va prendre en compte les cibles dont la période de décroissance est supérieure à 5 ans et qui sont déjà entreposées dans le local du CERN.

Tout d'abord, il faudra définir précisément la cible à évacuer, c'est-à-dire rassembler toutes les informations afin de bien connaître son architecture, la composition exacte de ses structures, son temps d'irradiation par le faisceau de proton ainsi que son temps de décroissance. De là, vient la nécessité de mettre en place une sorte de « carte d'identité » précise de chaque cible irradiée comportant toutes ces informations. Une attention particulière sera accordée au suivi de l'éventuelle évolution de la composition des matériaux utilisés pour la construction de cibles.

A partir de ce moment, la modélisation de la cible pourra être faite et la simulation sera lancée. Grâce aux résultats obtenus, on pourra définir les émetteurs contenus dans les différentes structures. On calculera aussi les débits de dose prévisibles autour de la cible à évacuer.

Avant tout découpage de la cible, on effectuera, au préalable, les mesures de débit d'équivalent de doses aux mêmes points que lors de la simulation par FLUKA. On pourra donc vérifier la cohérence des résultats et par-là même, déceler une éventuelle erreur en cas d'écart important. Cette mesure apportera aussi une information relative au risque d'irradiation que présente la cible pour les opérateurs.

La cible sera alors déplacée vers les hottes ventilées de l'installation ISOLDE.
On va donc démonter la cible sous hotte ventilée avec tout l'équipement de protection et de contrôle requis (tenue Tyvek, dosimètres). Celles-là seront ensuite classées, selon le type d'émetteurs qu'elles contiennent, dans les différents containers d'évacuation. Au moment d'effectuer la liste des émetteurs α, β et γ destinée à PSI, il suffira de prendre la liste produite par FLUKA et rajouter les radioéléments provenant de la contamination.

Le problème à résoudre à la suite de cette proposition de procédé d'élimination, est de trouver une méthode afin de pouvoir évaluer de manière relativement précise la contamination fixée sur ces pièces.

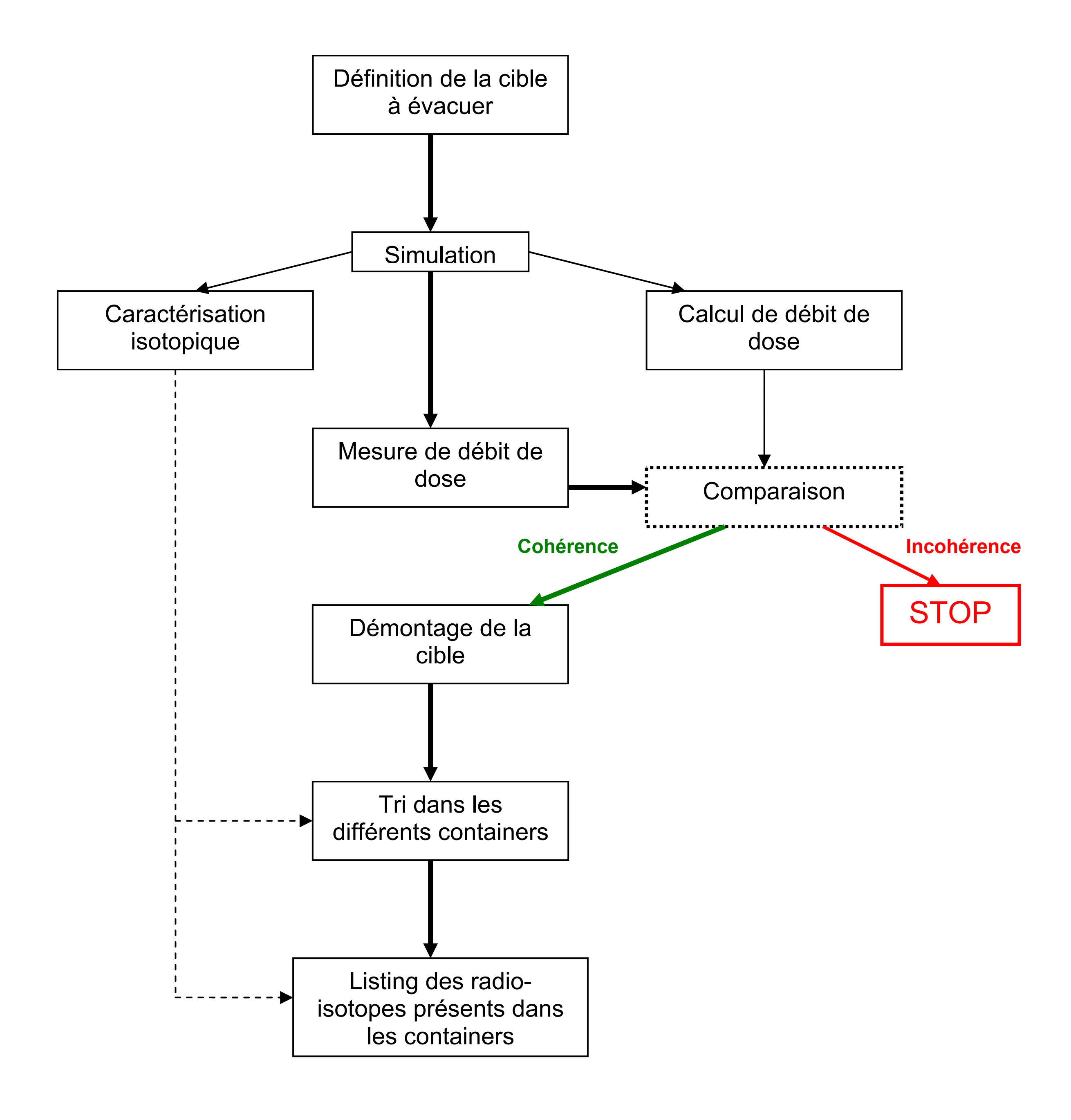


Figure 30: Organigramme de la procédure d'évacuation.

Conclusion

Au terme de cette étude, nous pouvons conclure que la méthode de simulation par le code de calcul FLUKA est fiable. Cependant, il faut garder à l'esprit qu'il existera toujours des différences entre les résultats de simulation et les valeurs physiques dues à divers paramètres tels que les simplifications de modélisation ou les incertitudes relatives à la composition des matériaux mis en jeu. De plus, certains phénomènes, qui ne peuvent être modélisés, viennent interférer dans les processus simulés tel que celui de la contamination des pièces à évacuer.
Pour aboutir à des résultats cohérents avec la réalité, il faudra donc prendre garde à utiliser cet outil de calcul dans le cadre d'une méthode précise et adaptée. Celle-ci aura pour but de tenir compte de ces différents paramètres échappant à la simulation, en appliquant des corrections aux résultats « bruts » obtenus au terme du calcul.
La suite du travail sera donc de déterminer une méthode permettant de quantifier, de manière fiable, la contamination fixée sur les pièces.
S'ajouteront ensuite la rédaction de nombreux protocoles de mise en œuvre de la procédure pour les divers acteurs concernés. Ces protocoles auront pour but de garantir la stabilité de la méthode au niveau de la cohérence des résultats et la protection des personnes et de l'environnement contre la contamination lors des diverses manipulations.

Tout ceci permettra une bonne gestion de ce type de déchets expérimentaux et une évacuation sûre et maîtrisée afin de leur garantir un conditionnement adéquat. La stabilité de l'intégrité de ces déchets dans le temps nous permettra de léguer aux générations futures des déchets dont le risque aura été autant que possible limité.
Reste maintenant à réfléchir et à mettre en œuvre des méthodes permettant de maîtriser, mais surtout limiter, les déchets avant même leur production.

Bibliographie

[1] « Ordonnance sur la radioprotection », ORaP 814 501, 22 Juin 1994 (Etat le 1e Février 2005)

[2] A Ferrari, P R Sala, A Fassò, J Ranft, « Fluka Manual, Program version 2003 », 2003.

[3] « Genie 2000, Spectrometry System, Customization Tools Manual », Canberra, 2001.

[4] M. Brugger, A. Ferrari, S. Roesler, L. Ulrici, « Validation of the FLUKA Monte Carlo code for predicting induced radioactivity at high-energy accelerators », 30 June 2005.

[5] Yury E. Titarenko, Institute for Theoretical and Experimental Physics, « Experimental and Theoretical Study of the Yields of Residual Product Nuclei Produced in Thin Targets Irradiated by 100-2600 MeV Protons », International Nuclear Data Committee, February 2003.

Site du CERN: Http://www.cern.ch

Site de la commission de sécurité : Http://safety-commission.web.cern.ch

Site du service de spectrométrie : http://cern.ch/service-spectrometry

Site officiel du code de calcul FLUKA : http://www.fluka.org/

Site de la société Canberra : http://www.canberra.com

Site de la NAGRA : http://www.nagra.ch/index2.htm

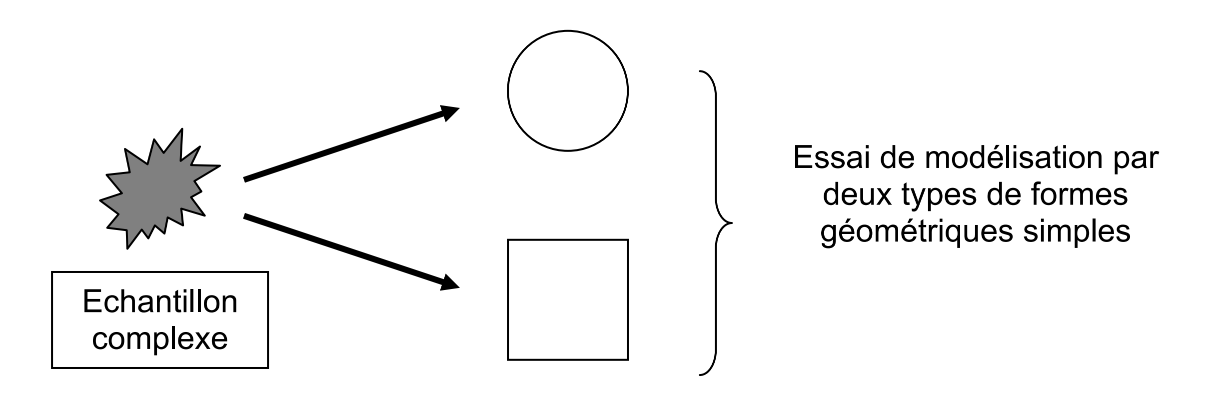
Site de l'Institut Paul Scherrer : http://www.psi.ch/

Site de l'Office Fédéral de la Santé Publique : http://www.bag.admin.ch/strahlen/f/index.php

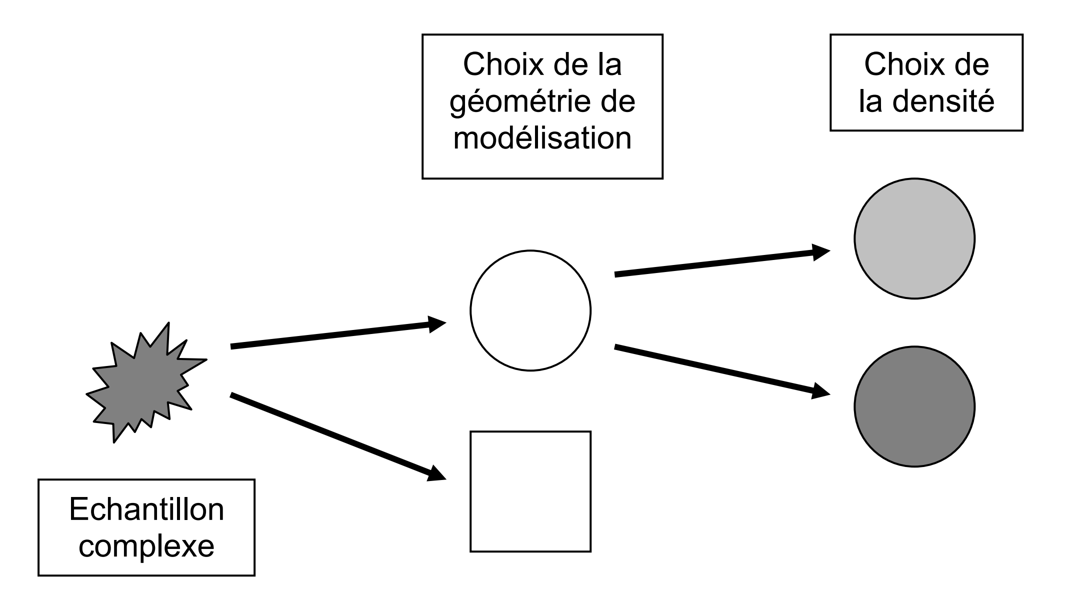
Annexes

<u>Annexe 1 : Modélisation d'échantillons pour l'analyse spectrométrique γ</u>

Le logiciel LabSOCS, qui a pourtant une grande maniabilité, ne permet de modéliser que des échantillons de forme simple. Pour les plus complexes, il existe des modélisations définies que l'ont peut faire évoluer, mais seulement de manière très limitée. Dans notre cas, il se trouve qu'elles ne sont pas adaptables à la forme de nos échantillons.
Il ne nous reste donc plus qu'à assimiler nos sources à des géométries plus simples que nous pourront exploiter.
Plusieurs géométries simples peuvent modéliser nos échantillons. Nous allons essayer toutes les géométries s'approchant le plus de nos échantillons.



Un problème se pose aussi dans la façon dont on assimile notre géométrie réelle à une géométrie de modélisation simple. En effet, on peut garder la même densité dans un volume différent et donc changer la masse ou adapter la densité en gardant la même masse pour un volume différent.



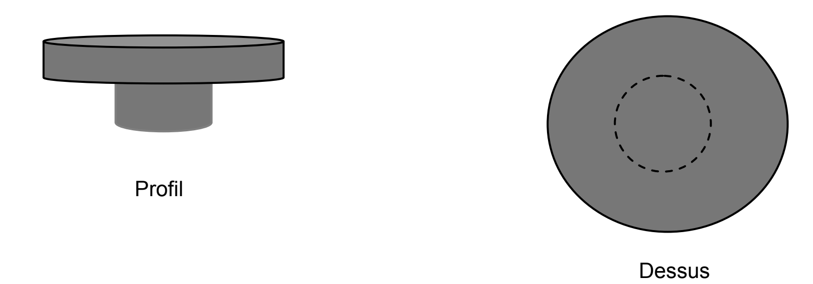
Nous allons donc pour chacun des échantillons, examiner les différentes combinaisons qui s'offrent à nous, tout en ne gardant au final, que la plus péjorative du point de vue de l'activité.

Même densité pour un volume différent.

La densité est plus faible car la masse a été repartie dans un volume plus grand.

La densité est plus importante car la masse a été repartie dans un volume plus petit.

Echantillon n°1



Différents essais de modélisation

M1

M2

M3

M4

M5

M6

$(Bq.g^{-1})$	Type de modélisation	M1	**M2**	M3	M4	M5	M6
Activité moyenne pondérée	^{22}Na	780	**855**	790	765	793	790
	^{54}Mn	19.6	**22**	19.9	19.1	19.9	19.8
	^{60}Co	1.07	**1.17**	1.08	1.05	1.08	1.08

Echantillon n°2 (V= 12.8 cm^3; m = 103g; d = 8.06 $g.cm^{-3}$)



Différents essais de modélisation

M1

M2

M3

M4

M5:

($Bq.g^{-1}$)	Type de modélisation	M1	M2	M3	M4	**M5**
Activité moyenne pondérée	^{22}Na	2.65	2.72	2.66	2.33	**2.85**
	^{54}Mn	143	147	143	122	**155**
	^{57}Co	233	247	234	160	**271**
	^{60}Co	1480	1520	1490	1300	**1590**
	^{65}Zn	15.6	16	15.7	13.6	**16.8**

Annexe 2 : Caractéristiques de cibles

Cibles utilisées pour le prélèvement des échantillons : 123 (CaO), 108 (Sn), 81 (Nb),

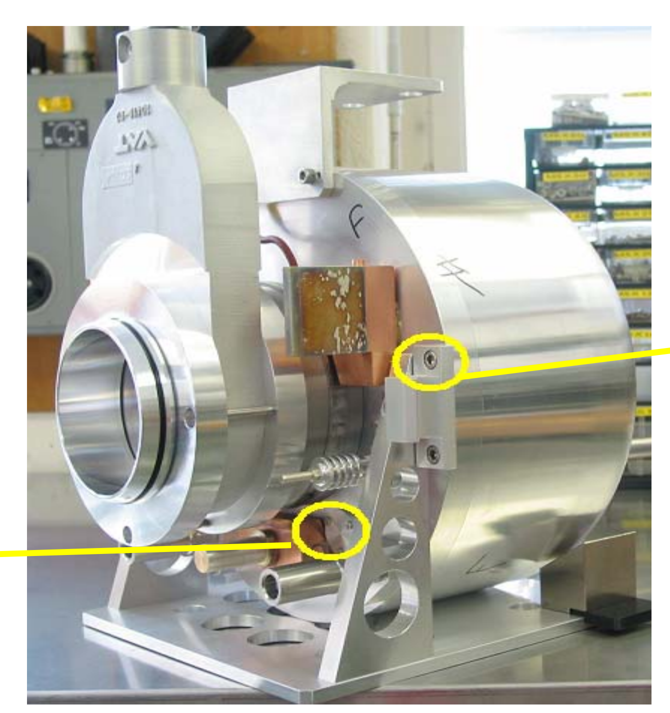
Tableau des échantillons

N° Cible	Matériau cible	Géométrie d'extraction des radios isotopes	Type d'ioni-sateur	Irradiation $1.0^{E}18$p	Date de fin d'irradiation	Temps de décroissance au 18/04/05	DEBIT DE DOSE	
							Contact $mSv.h^{-1}$	A 1m $\mu Sv.h^{-1}$
123	CaO	Extraction gaz nobles	MK7	7.25	11 Nov. 1999	1983j	7.7	80
108	Sn	Extraction normale	MK3	2.19	30 Juin 1998	2480j	6.4	135
81	Nb	Extraction normale	Surface	3.80	28 Août 1998	2423j	24	200

La date du 18/04/05 est arbitraire, elle est présente pour faciliter l'inter comparaison des temps de décroissance.
Le débit de dose, présenté à titre indicatif, a été mesuré au moment du transfert entre le couloir d'irradiation et le lieu d'entreposage du CERN.

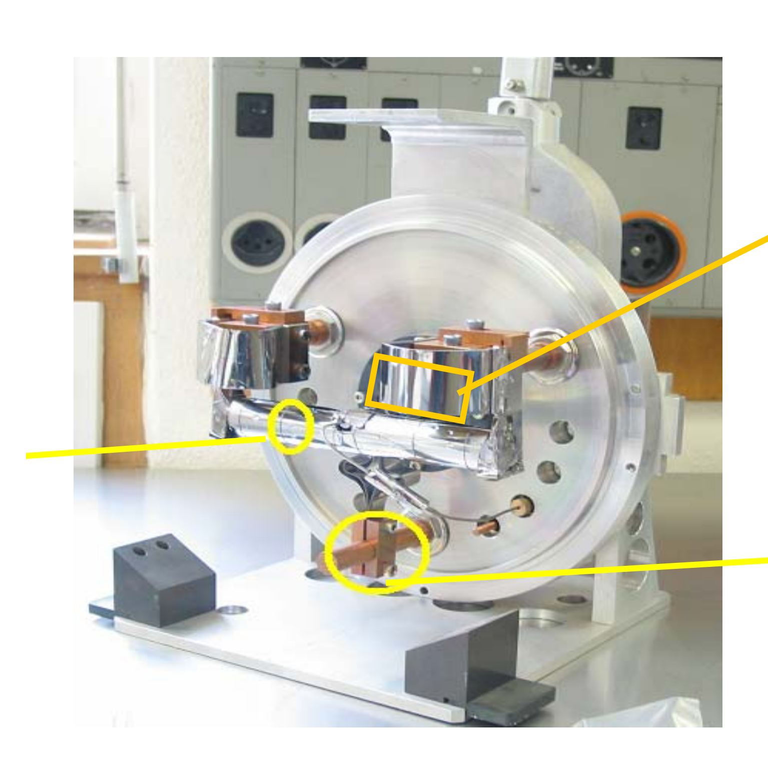
Annexe 3 : Echantillons étudiés

Emplacements :



Vis extérieure casserole (Inox)
Cibles 123 (CaO), 108 (Sn).

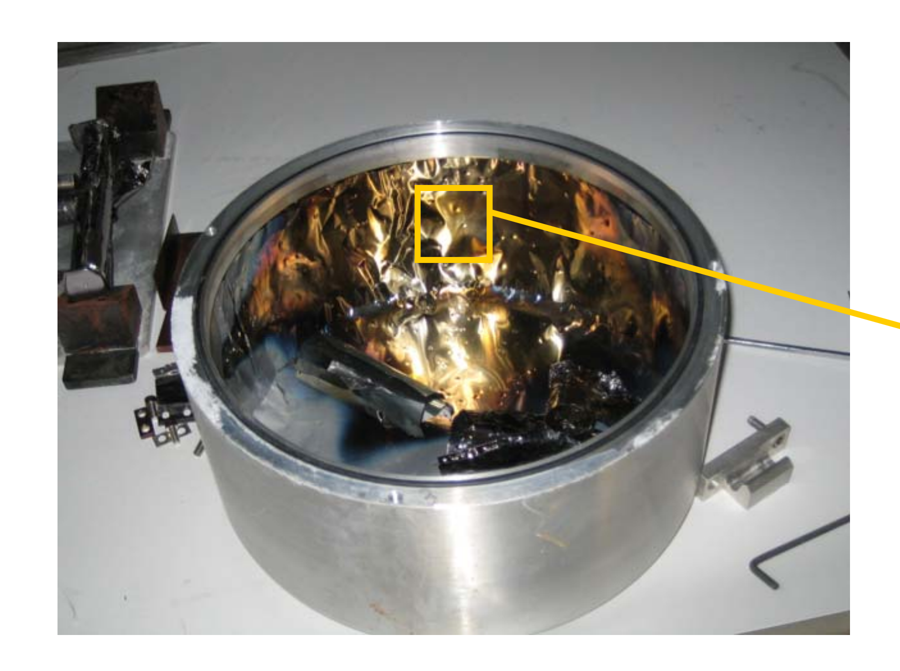
Bouchon (Al)
Cibles 123 (CaO), 81 (Nb)



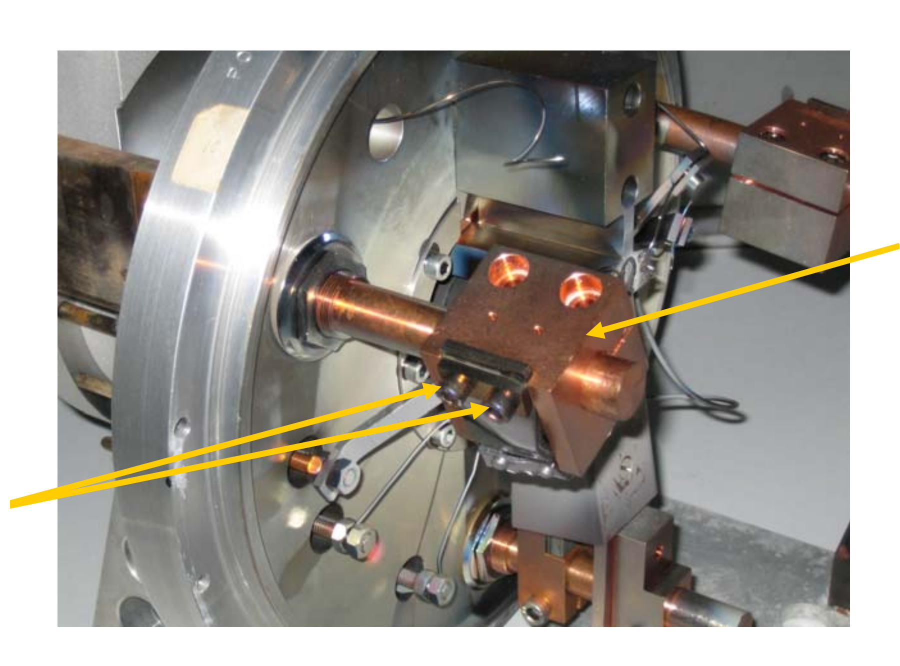
Ecran container (Mo)
Cible 108 (Sn).

Fil (Ta)
Cible 123 (CaO)

Bloc chauffage ligne (Cu)
Cibles 123 (CaO), 108 (Sn), 81 (Nb)



Ecran casserole
(Inox)
Cibles 108 (Sn),
81 (Nb)

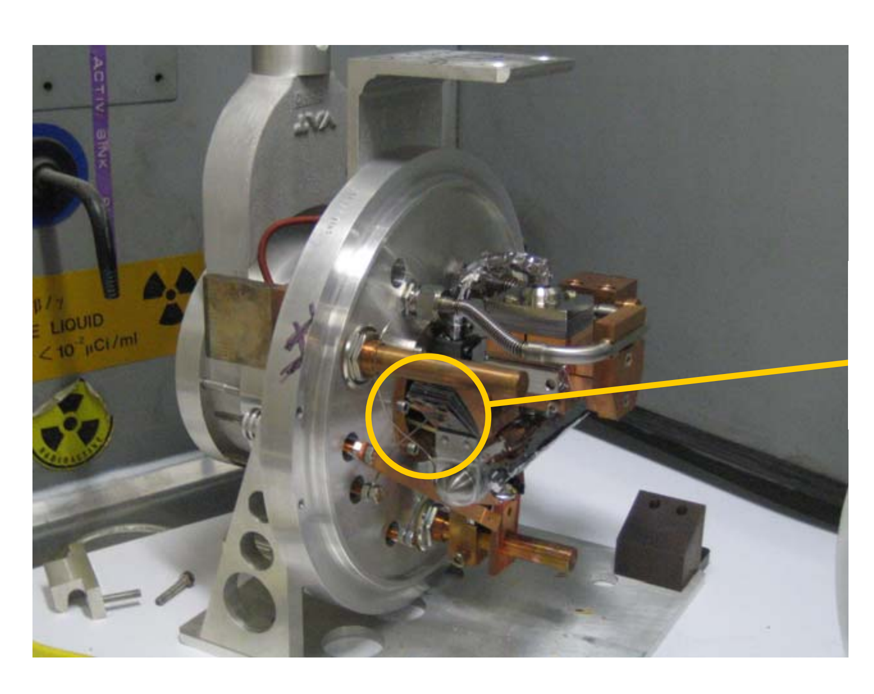


Bloc arrivée
courant (Cu)
Cibles 108 (Sn),
81 (Nb)

Deux vis arrivée
courant (Inox)
Cibles 108 (Sn), et
81 (Nb)

Arrivées courant
(Inox)
Cible 81 (Nb)





Arrivée courant
« mille feuilles »
(Ta)
Cibles 108 (Sn)

Composition :

Aluminium 2.7 g.cm^{-3}	Inox 7.5 g.cm^{-3}	Cuivre 8.96 g.cm^{-3}	Ta 16.65 g.cm^{-3}
Al : 95.95%	Fe : 66.97%	Cu : 100%	Ta : 100%
Cu : 0.1%	Cr : 17%		
Cu : 0.1%	Ni : 13.8%		
Si : 1.1%	Mo : 2.5%		
Mn : 0.7%	C : 0.03%		
Mg : 0.9%			
Zn : 0.2%			
Be : 0.5%			
Ti : 0.2%			
Cr : 0.35%			

Annexe 4 : Ensemble des résultats de l'étude

Certains résultats de spectrométrie présentent une incertitude supérieure à 50% sur la valeur de l'activité d'un radio élément. Ceci est dû à la très faible quantité d'activité par rapport à la MDA. Ceux-ci ne sont exposés qu'à titre indicatif pour signifier la présence du radioélément dans l'échantillon. Cependant, la valeur d'activité en elle-même n'a aucune valeur physique et ne doit, en aucun cas, être prise en compte.

Résultats de la cible 123 (CaO)

Bouchon (Al)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	417.4	9.8	860	9.8	0.3	0.5	13.86	0.07
^{54}Mn	18.68	25.2	22.1	10.7	0.82	0.8	27.38	0.22
^{60}Co			1.17	14.1	0.16			

Bloc (Cu)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			2.85	14.2	0.37			
^{54}Mn	125.1	3.4	155	10.2	1.5	0.8	10.75	0.09
^{57}Co	150	3	271	12.7	2.9	0.5	13.05	0.06
^{60}Co	1146	2.9	1590	8.4	0.32	0.7	8.89	0.06
^{65}Zn	8.29	7.7	16.8	17.1	3.2	0.5	8.89	0.04

Vis extérieure casserole (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			1.76	12.1	0.12			
^{44}Sc			0.309	101.5	0.49			
^{44}Ti			0.5	29.4	0.22			
^{54}Mn	338.8	4	328	10.2	0.44	1	10.96	0.11
^{57}Co	107	7.8	71.7	12.5	0.36	1.5	14.73	0.22
^{60}Co	58.06	26.2	155	8.4	0.11	0.4	27.51	0.11

Fil (Ta)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{60}Co	306.4	22.6	62.3	45.4	46	4.92	50.71	2.49
^{133}Ba	279.8	18.6	466	15.8	100	0.6	24.40	0.15
^{145}Pm	105000	0.8	7100	27.5	790	14.79	27.51	4.07
^{145}Sm	4839	1.7	7261.5	22.8	580	0.67	22.86	0.15
^{172}Hf	40150	1.8	18500	11.8	150	2.17	11.94	0.26
^{172}Lu	40560	1.8	18683	7	100	2.17	7.23	0.16
^{173}Lu	37390	1.2	41200	9.4	150	0.91	9.48	0.09
^{174}Lu	5561	4.9	6580	59.7	410	0.84	59.90	0.50
^{178}Hf			155	11.3	29			
^{179}Ta	142200	0.8	246000	13.1	640	0.58	13.12	0.08

Résultats de la cible 108 (Sn)

Vis extérieur casserole (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			0.23	51.1	0.17			
^{54}Mn	58.57	3.9	48.5	10.4	0.63	1.2	11.11	0.13
^{57}Co	14.55	5.1	9.76	13.9	0.25	1.5	14.81	0.22
^{60}Co	49.07	11.2	126	8.4	0.24	0.4	14	0.05

Bloc arrivée courant (Cu)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{54}Mn	25.96	1.7	33.2	14.2	4.3	0.8	14.30	0.11
^{57}Co	28.07	0.9	52.8	17.9	7.1	0.5	17.92	0.09
^{60}Co	1675	0.7	3000	8.4	1.9	0.6	8.43	0.05

Ecran aval (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	129.5	19.2	851	10	4.7	0.15	21.65	0.03
^{42}K	19.02	45.9	45.1	27.3	14	0.42	53.40	0.22
^{44}Sc	485.1	4.3	370	10.3	6.6	1.31	11.16	0.15
^{44}Ti	485.1	4.3	372	12.1	2.4	1.3	12.84	0.17
^{54}Mn	1837	0.5	2050	10.2	8.9	0.90	10.21	0.09
^{57}Co	501.3	1.6	257	13	3.3	1.95	13.10	0.25
^{60}Co	478.5	12.3	861	8.5	4.3	0.55	14.95	0.08

Bloc Chauffage Ligne (Cu)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{54}Mn	27.09	2.5	27.2	16.2	4.4	1	16.39	0.16
^{57}Co	28.99	1.5	38.3	19.4	6.1	0.7	19.46	0.14
^{60}Co	1307	1.7	1560	8.4	2.1	0.8	8.57	0.07

2 Vis Arrivée Courant (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			5.27	12.2	0.4			
^{44}Sc	1.87	40.8	4.09	16.1	0.64	0.5	43.86	0.28
^{44}Ti	1.87	40.8	4.71	18.7	0.43	0.4	44.88	0.19
^{54}Mn	123.4	1.3	377	10.2	1	0.3	10.28	0.10
^{57}Co	31.2	3.6	56.6	12.6	0.38	0.5	13.10	0.05
^{60}Co	80.25	14.7	354	8.4	0.39	0.2	16.93	0.07

Ecran container (Mo)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			10.9	72.1	12			
^{60}Co	48.49	55.3	73	17.3	11	0.7	57.94	0.40
^{102}Rh			41.5	23.4	19			
^{108}Ag			51.5	15.3	13			
^{133}Ba			637	11	18			
^{143}Pm			41.6	83.2	38			
^{150}Eu			28.8	19.3	13			
^{172}Hf			7290	10.1	31			
^{172}Lu			7362	10.2	28			
^{173}Lu			7930	9.6	31			
^{174}Lu			1890	17.3	57			
^{178}Hf			75.7	9.9	11			
^{179}Ta			29300	14.4	75			
^{194}Au			114	120.1	26			

Ecran casserole amont (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	451.3	12	10.1	40.3	5.2	44.7	42.05	18.79
^{44}Sc	876.3	3	10.2	78.2	12	85.9	78.26	67.22
^{44}Ti	876.3	3	10.2	23.2	2.2	85.9	23.39	20.09
^{54}Mn	3293	1.6	686	10.6	12	4.8	10.72	0.51
^{57}Co	938.9	1.2	133	14.2	2.8	7.1	14.25	1.01
^{60}Co	742.2	8.8	910	8.6	6.1	0.8	12.30	0.10

Arrivée courant « Mille feuilles »(Ta)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{172}Hf	219.1	3.1	316	20.6	20	0.7	20.83	0.14
^{172}Lu	221.8	3.1	319	7.2	2.3	0.7	7.84	0.05
^{173}Lu	176.9	2.4	522	12.5	7.6	0.3	12.73	0.04
^{174}Lu	50.24	10.5	203	60.5	32	0.2	61.40	0.12
^{178}Hf			9.3	13.1	1.2			
^{179}Ta	2065	0.7	7910	14.1	56	0.3	14.12	0.04

Résultats de la cible 81 (Nb)

Bouchon amont (Al)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	283.3	10.6	484	10.2	2	0.58	14.71	0.08
^{54}Mn	5.14	15.4	10.7	40.7	6.1	0.48	43.52	0.21
^{60}Co	3.26	99	18.7	14.2	1.6	0.17	100.01	0.17
^{65}Zn	0.053	99	7.67	58.3	6.4	0.007	114.89	0.01
^{174}Lu			16	33.9	5.9			

Vis arrivée courant *2

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			5.54	10.9	0.21			
^{42}K			0.412	61.3	0.36			
^{44}Sc	3.26	40.8	2.95	15.6	0.45	1.1	43.68	0.48
^{44}Ti	3.26	40.8	3.9	13.7	0.23	0.84	43.04	0.36
^{54}Mn	244.8	1.3	188	10.2	0.61	1.30	10.28	0.13
^{57}Co	63.13	3.6	30	12.5	0.19	2.10	13.01	0.27
^{60}Co	142.3	14.7	237	8.4	0.23	0.60	16.93	0.10
^{65}Zn			10.4	14.6	1.4			
^{125}Sb			12.9	11.2	1.1			
^{133}Ba			0.72	52.2	0.37			
^{172}Hf			2.37	26.4	0.62			
^{172}Lu			2.39	43.9	0.94			
^{173}Lu			1.16	52.1	0.58			
^{174}Lu			5.98	31.5	1.1			

Bloc arrivée courant (Cu)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			3.71	27.1	1.3			
^{54}Mn	32.4	3.6	24.8	19.9	5.9	1.31	20.22	0.26
^{57}Co	33.16	1.9	16.5	28.9	5.9	2.01	28.96	0.58
^{60}Co	1248	2.3	1960	8.4	1.4	0.64	8.71	0.05
^{65}Zn	1.37	9.8	19	26.2	6.6	0.07	27.97	0.02
^{125}Sb			10.1	49.7	8.8			
^{172}Hf			12.3	22.9	5.3			
^{174}Lu			109	22.6	34			

Bloc chauffage ligne (Cu)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			7.94	21.1	1.8			
^{54}Mn	33.37	1.4	62.8	12.8	5.8	0.53	12.88	0.07
^{57}Co	36.83	0.8	45.5	18.5	6.7	0.81	18.52	0.15
^{60}Co	1633	0.4	1580	8.4	2.1	1.03	8.41	0.09
^{125}Sb			27.1	26.3	12			
^{133}Ba			5.95	48.1	4.1			
^{145}Pm			619	34.4	140			
^{172}Hf			10.9	71.4	10			
^{172}Lu			11.0	28	11			
^{173}Lu			23.5	41.7	14			
^{174}Lu			611	17.1	50			

Arrivée courant*2 (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			13.2	10.9	0.45			
^{44}Sc	12.03	18.9	20.9	12.5	0.82	0.57	22.66	0.13
^{44}Ti	12.03	18.9	20.9	14.2	0.73	0.57	23.64	0.13
^{54}Mn	442.5	1.6	393	10.2	1.2	1.12	10.32	0.11
^{57}Co	98.24	2.0	53.7	12.9	0.61	1.83	13.05	0.24
^{60}Co	228.5	8.2	315	8.4	0.46	0.72	11.74	0.08
^{125}Sb			40.1	10.1	2.7			
^{133}Ba			10.6	13.3	0.92			
^{145}Pm			57.8	24.6	9.1			
^{172}Hf			11.5	22.4	1.8			
^{172}Lu			11.6	10.5	1.9			
^{173}Lu			22.2	17.2	2			
^{174}Lu			6.28	89.6	4.4			

Vis externe casserole (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na			1.08	14.4	0.11			
^{44}Sc	0.81	99	0.86	24.7	0.27	0.94	102.03	0.96
^{44}Ti	0.81	99	1.3	16.4	0.19	0.62	100.35	0.62
^{54}Mn	68.75	3.1	33.1	10.3	0.32	2.08	10.76	0.22
^{57}Co	15.10	6	7.16	13.8	0.18	2.11	15.05	0.32
^{60}Co	57.00	15.9	105	8.4	0.12	0.54	17.98	0.1

Ligne d'ionisation (W)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{57}Co			3.6	34.8	3.2			
^{60}Co	16.68	50.9	1.06	35.6	0.6	15.7	62.11	9.75
^{60}Fe			13700	31.2	300			
^{133}Ba			4.82	23.2	1.3			
^{172}Hf	2645	3.4	61.5	26.5	1.1	43	26.72	11.49
^{172}Lu	2685	3.4	62.11	6.7	1.2	43.22	7.51	3.25
^{173}Lu	1934	1.9	367	10.2	3.9	5.27	10.37	0.55
^{174}Lu	145.5	12.8	33.1	29.5	12	4.39	32.16	1.41
^{178}Hf			3.99	11.4	0.83			
^{179}Ta	8902	1.9	3030	12.8	27	2.94	12.94	0.38
^{182}Ta	0.029	3.1	1.68	90.5	1.00	0.0003	90.55	0.00027

Ecran casserole amont (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	769.3	8.1	3590	10.2	29	0.21	13.02	0.03
^{42}K	53.76	24.1	255	29.4	71	0.21	38.01	0.08
^{44}Sc	1383	3.5	1270	11	39	1.09	11.54	0.123
^{44}Ti	1383	3.5	1400	12.8	18	0.99	13.27	0.13
^{54}Mn	6302	0.7	3920	10.4	45	1.61	10.42	0.17
^{57}Co	1860	1	643	14.8	25	2.89	14.83	0.43
^{60}Co	1423	4	2760	8.7	27	0.51	9.57	0.05
^{145}Pm			1110	46.2	40			
^{172}Hf			123	18.5	26			
^{173}Lu			154	56.9	21			

Ecran casserole aval (Inox)

Radio-isotopes produits	Simulation		Spectrométrie			Simulation/Spectrométrie		
	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	Activité (Bq.g-1)	Erreur (%)	MDA (Bq.g-1)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (Bq.g-1)
^{22}Na	437.6	14	28100	9.9	68	0.01	17.15	0.002
^{42}K	44.8	24.8	2050	15.7	240	0.02	29.35	0.006
^{44}Sc	1066	3.6	7280	10.1	110	0.15	10.72	0.02
^{44}Ti	1066	3.6	7280	14.1	54	0.15	14.55	0.02
^{54}Mn	4715	0.9	38500	10.2	140	0.12	10.24	0.01
^{57}Co	1348	1.5	3750	13.4	50	0.36	13.48	0.05
^{60}Co	1019	8	25800	8.4	63	0.04	11.60	0.005
^{125}Sb			538	29.6	74			
^{133}Ba			112	70.5	45			
^{172}Hf			379	24.4	63			
^{172}Lu			382.7	58.6	150			
^{173}Lu			6460	78.0	52			
^{179}Ta			779	20.8	180			

Annexe 5 : Comparaison des valeurs de sections efficaces

Fluka ne fait pas la distinction entre les éléments métastables et à l'état fondamental.
En effet le model nucléaire qu'il utilise est très simplifié.

De manière expérimentale, l'ITEP a mesuré différents types de sections efficaces :
i : section efficace individuelle
m : pour les éléments métastables
g : « grown state » pour les élément a l'état fondamental

Dans notre cas, on pourras assimiler les isotopes de section efficaces i(m+g) à celles données par Fluka, en revanche, les i(m) seront a prendre avec plus de précautions, car non accessibles par le calcul…mais présentées tout de même a titre informatif.

^{63}Cu, 5 fichiers de 1.0^{E}7 protons de 1.2 GeV

Radio-isotopes produits	Simulation		Expérimentation		Simulation/Expérimentation		
	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (mbarn)
^{7}Be			5.35	9.35			
^{34m}Cl	0.336	11.3	0.571	8.58	0.6	14.19	0.08
^{42}K	1.48	3.4	4	7.25	0.4	8.01	0.03
^{44}Sc	8.75	2.2	6.21	7.57	1.4	7.88	0.11
^{46}Sc i (m+g)	3.91	2.3	8.1	7.04	0.5	7.41	0.04
^{47}Sc	1.83	2.1	3.11	7.39	0.6	7.68	0.05
^{48}Sc	0.53	7.8	0.576	7.05	0.9	10.51	0.09
^{52}Mn	9	1.4					
^{54}Mn	17.1	0.8	21.2	7.07	0.8	7.11	0.06
^{56}Ni	0.061	29	0.084	14.28	0.7	32.32	0.23
^{57}Co	17	1.3	26.4	7.57	0.6	7.68	0.05
^{58}Co	22.5	1.1	10.4	25	2.2	25.02	0.55
^{60}Co i (m+g)	9.23	0.8	9.05	7.29	1	7.33	0.07
^{62}Zn	0.86	7.5	0.47	11.06	1.8	13.36	0.24
^{63}Zn	1.14	4.2	1.3	15.38	0.9	15.94	0.14

^{65}Cu, 5 fichiers de 1.0E7 protons de 1.2 GeV

Radio-isotopes produits	Simulation		Expérimentation		Simulation/Expérimentation		
	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (mbarn)
^{7}Be			4.55	9.23			
^{34m}Cl i (m)	0.359	7.3	0.332	9.64	1.08	12.09	0.13
^{38}Cl i (m+g)	0.265	2.5	2.01	7.46	0.13	7.87	0.01
^{42}K	1.28	2.8	4.87	7.19	0.26	7.72	0.02
^{44}Sc	8.43	1.3	4.86	7.6	1.73	7.71	0.13
^{46}Sc i (m+g)	3.85	1.4	9.87	6.99	0.39	7.13	0.03
^{47}Sc	1.95	2.3	4.86	7.2	0.4	7.56	0.03
^{48}Sc	0.434	7.1	1.22	7.38	0.36	10.24	0.04
^{52m}Mn i (m)	8.79	1.3	2.08	4.81	4.23	4.98	0.21
^{54}Mn	17.1	0.8	22.7	7.05	0.75	7.09	0.05
^{56}Ni	0.077	14.5	0.360	23.61	0.21	27.71	0.06
^{57}Co	17	1.7	18.7	6.95	0.91	7.15	0.06
^{58}Co	22.7	0.9	5.21	32.63	4.35	32.64	1.42
^{60}Co i (m+g)	9.02	1.7	17	7.06	0.53	7.26	0.04
^{62}Zn	0.764	6.7	0.221	12.67	3.46	14.33	0.50
^{62m}Co i (m)	1.62	3	1.65	6.67	0.98	7.31	0.07
^{63}Zn	1.24	5.2	1.34	19.4	0.92	20.08	0.18
^{64}Cu	34.8	0.7	62.1	7.57	0.56	7.60	0.04
^{65}Zn	0.36	7.1	1.75	8	0.21	10.70	0.02

^{56}Fe, 5 fichiers de 1.0^{E}7 protons de 2.6 GeV

Radio-isotopes produits	**Simulation**		**Expérimentation**		**Simulation/Expérimentation**		
	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (mbarn)
^{7}Be	0.104	15.8	8.95	10.17	0.012	18.79	0.002
^{34m}Cl i (m)	1.61	2.6	0.870	8.96	1.85	9.33	0.17
^{38}Cl i (m+g)	0.727	5.5	1.72	9.3	0.42	10.80	0.04
^{42}K	2.25	2.4	3.91	8.44	0.57	8.77	0.05
^{44}Sc	13.3	1.8	6.67	8.4	1.99	8.59	0.17
^{46}Sc i (m+g)	4.99	2.3	7.18	8.5	0.69	8.81	0.06
^{48}Sc	0.607	2.9	0.428	9.11	1.42	9.56	0.14
^{52m}Mn i (m)	16.7	0.5	5.5	8.9	3.03	8.91	0.27
^{54}Mn	41.6	0.9	32.8	8.23	1.27	8.28	0.10
^{55}Co	0.489	11	0.274	9.12	1.78	14.29	0.25
^{56}Co	1.5	4.5	1.02	8.82	1.47	9.90	0.14
^{57}Co	0.0283	28.3	0.365	9.04	0.077	29.71	0.02

^{93}Nb, 5 fichiers de 1.0^{E}7 protons de 2.6 GeV

Radio-isotopes produits	Simulation		Expérimentation		Simulation/Expérimentation		
	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (mbarn)
^{7}Be			10	11			
^{34m}Cl i (m)	0.036	35.4	1.93	15.54	0.02	38.66	0.008
^{42}K	0.166	17	1.79	9.5	0.09	19.47	0.02
^{44}Sc	1.15	8.2	0.787	16.52	1.46	18.44	0.27
^{46}Sc i (m+g)	0.555	7.4	2.91	8.93	0.19	11.60	0.02
^{48}Sc	0.072	15.8	0.388	8.5	0.19	17.94	0.03
^{58}Co i (m+g)	5.18	2.1	8.97	8.58	0.58	8.83	0.05
^{60}Co i (m+g)	1.03	3.8	9.24	10.71	0.11	11.36	0.01
^{69m}Zn i (m)	0.0648	20.8	0.205	15.12	0.32	25.71	0.08
^{72}As	11.6	1.4	11.3	8.85	1.03	8.96	0.09
^{74}As	1.72	3.9	3.83	9.66	0.45	10.42	0.05
^{74m}Br i (m)	1.58	6.7	2.89	12.8	0.55	14.45	0.08
^{76}Br i (m+g)	8.92	1.4	10.6	8.49	0.84	8.60	0.07
^{82m}Rb i (m)	9.67	2.3	10.3	7.77	0.94	8.10	0.08
^{84}Rb i (m+g)	3.01	3.9	3.86	8.8	0.78	9.62	0.07
^{86}Y i (m+g)	20.5	1.1	17.6	7.95	1.16	8.026	0.09
^{87m}Y i (m)	25.6	1.3	16.5	10.9	1.55	10.98	0.17
^{88}Y	12.7	2.2	12.8	8.59	0.99	8.87	0.09
^{89m}Nb i (m)	4.38	2.8	1.43	10.49	3.06	10.86	0.33
^{90}Mo	1.37	7.2	0.584	11.81	2.35	13.83	0.32
^{90m}Y i (m)	3.01	3	1.6	8.75	1.88	9.25	0.17
^{92m}Nb i (m)	117	0.4	19.1	8.38	6.13	8.39	0.51
^{93m}Mo i (m)	0.886	3.6	0.298	14.76	2.97	15.19	0.45

^{58}Ni, 5 fichiers de 1.0^{E}7 protons de 2.6 GeV

Radio-isotopes produits	**Simulation**		**Expérimentation**		**Simulation/Expérimentation**		
	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Section efficace (mbarn)	Erreur (%)	Rapport	Erreur relative (%)	Erreur absolue (mbarn)
^{7}Be	0.035	11.7	12.4	10.48	0.0028	15.71	0.0004
^{34m}Cl i (m)	1.5	3	1.47	8.16	1.02	8.69	0.09
^{38}K	1.43	5.7	0.957	13.06	1.49	14.25	0.21
^{38}Cl i (m+g)	0.468	4.8	0.886	8.8	0.53	10.02	0.05
^{42}K	1.6	2.8	1.94	8.25	0.82	8.71	0.07
^{44}Sc	12.7	1.3	7.11	8.3	1.79	8.40	0.15
^{46}Sc i (m+g)	3.12	1.7	3.63	8.26	0.86	8.43	0.07
^{48}Sc	0.199	7.7	0.076	22.37	2.62	23.66	0.62
^{52m}Mn i (m)	16.7	1.1	7.09	8.74	2.35	8.81	0.21
^{54}Mn	14.2	0.9	9.9	8.28	1.43	8.33	0.12
^{56}Co	35.8	0.6	33.5	8.36	1.07	8.38	0.09
^{57}Co	78.9	1	50.8	8.66	1.55	8.72	0.13
^{58}Co i (m+g)	14	1.1	6.21	8.37	2.25	8.44	0.19